



Etude de la dynamique des processus de transformation atomes-ions dans les systèmes de production d'ions radioactifs ISOL

Pascal Jardin

► To cite this version:

Pascal Jardin. Etude de la dynamique des processus de transformation atomes-ions dans les systèmes de production d'ions radioactifs ISOL. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université de Caen, 2013. tel-00927550

HAL Id: tel-00927550

<https://theses.hal.science/tel-00927550>

Submitted on 13 Jan 2014

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Université de Caen
Basse-Normandie



GANIL R 2013-01

UNIVERSITÉ DE CAEN / BASSE-NORMANDIE

U.F.R. : Sciences

Directeur de l'UFR : Marc Levalois

Mémoire en vue de l'obtention du diplôme d'Habilitation à Diriger les Recherches

Date de soutenance : Mardi 10 Décembre 2013

Mr. Pascal Jardin

Domaine : instrumentation pour la physique nucléaire

Titre :

**Etude de la dynamique des processus de transformation atomiques
dans les systèmes de production d'ions radioactifs ISOL**

Membres du Jury

Mr Yorick Blumenfeld, Directeur de recherche CNRS, Rapporteur, IPNO, 15 rue Georges Clémenceau, ORSAY

Mr Jacques Lettry, Chercheur sénior ABP Group, Rapporteur, CERN, Genève

Mr Bertram Blank, Directeur de recherche CNRS, CENBG, Le Haut-Vigneau, Chemin du Solarium, Gradignan

Mr Gilles Ban, Professeur (Sect° CNU 29), Parrain et Rapporteur, LPC ENSI CAEN, 6 Bvd Maréchal Juin, CAEN

Mr Marek Lewitowicz, Directeur de recherche CNRS, Directeur de l'équipe de recherche, GANIL, Bvd Henri Becquerel, CAEN

Remerciements

Par où commencer, tant de personnes méritant d'être remerciées ? L'ordre chronologique me conduit à commencer par les membres du jury. L'aptitude d'un ingénieur à la littérature peut faire d'un tel mémoire une lecture ardue. Sans savoir *a priori* à quelle épreuve ils seraient confrontés, ils ont accepté sans hésitation de relire mon mémoire et pour certains d'en faire un rapport. Je les remercie donc vivement d'avoir accepté, et d'avoir trouvé un peu de temps dans leur planning pour effectuer ce travail supplémentaire.

Je veux ensuite vivement remercier l'ensemble des étudiants qui m'ont gratifié de leur investissement dans les sujets proposés. Le dernier en date, Alexandre Pichard, présentait des aptitudes pour la R&D que je n'imaginais pas exister chez un étudiant fraîchement sorti de l'école. Muni d'un équilibre personnel remarquable, il a placé la barre très haute pour ses successeurs. Il joue maintenant avec des bouchons dans les mers chaudes d'Australie (R&D d'hydroliennes). Je lui souhaite de réussir à en tirer le maximum de satisfaction, et aussi un peu d'électricité. Cyrille Eléon, son prédécesseur, avait élargi le chemin avec beaucoup d'engagement et d'endurance, alors qu'il était simultanément sollicité par Marie-Geneviève et moi-même sur un ensemble de sujets dont le volume était très ambitieux. Il est arrivé au bout à peine essoufflé (ou ne l'a pas montré) : merci pour ce travail.

Plusieurs autres étudiants se sont investis sans ménager leur peine dans le cadre de stages d'IUT, de Master ou de préparation du CNAM : Cécile Dumont, Nicolas Gerzé, Thomas Drobert, Pierre Gorel, Florent Durantel, Cynthia Huet Equilbec, Pierre Lecacheux. Ils ont tous contribué, chacun à leur façon, à faire évoluer les dispositifs de production d'ions radioactifs, et aussi mon appréhension de l'encadrement.

Travailler avec des personnes plus expérimentées telles que Wilfrid Farabolini (l'Indiana Jones de ce travail), Juan Alcantara (le calculateur) et Alain Méry (le premier à avoir fait fonctionner le système $1+/N+$ direct hors ligne) n'a été que du plaisir. J'ai oublié les détails au jour le jour de ces collaborations mais le sentiment qui m'en reste n'est que positif.

Marie-Geneviève n'a plus de carte d'étudiant, mais sa curiosité toujours en éveil justifierait que je lui en offre une. Notre association pour l'encadrement des étudiants consistait à ce qu'elle s'occupe principalement de la partie physique et moi de la R&D. Sa constante remise en question des problèmes auxquels je pensais déjà avoir répondu m'a souvent bousculé dans ce que je croyais acquis. J'ai compris que ce qui pouvait apparaître comme de l'obstination n'était en fait qu'une volonté permanente de restreindre l'espace accordé au doute. Son départ en retraite a mis un terme à cette association efficace et dynamique ; je n'avais plus le choix, il fallait obtenir l'HDR. Merci Marie de m'y avoir encouragé, et d'une certaine façon de ne pas m'avoir laissé le choix.

Hors de toute chronologie, les collègues du Groupe Production d'Ions ont toujours répondu présent à mes sollicitations parfois exotiques au regard de leur missions premières. Ce groupe se prête particulièrement bien à cet exotisme et constitue un vivier remarquable de dynamiques curieux qui ne se lassent pas de regarder les choses autrement

pour les faire évoluer. Je les remercie pour leur engagement et j'espère réussir à préserver, voire à faire évoluer, ce petit espace de liberté dans lequel germe les idées qui nous nourrissent et nous motivent.

Bien d'autres collègues ont été sollicités, parfois au pied levé, même si l'époque voudrait qu'au titre d'une rationalisation des ressources, le développement d'idées soit organisé comme une chaîne de production. Beaucoup de ces collègues ont aussi répondu présent, sans besoin de justification, simplement parce qu'ils sont investis dans leur travail jour après jour et ont confiance dans leur collègues. Merci à eux tous, très nombreux, à qui j'espère donner envie de continuer ainsi.

Existe aussi un ensemble de personnes qui détiennent des clés qu'elles livrent généreusement et qui m'ont entrouvert des portes devant lesquelles je piétinais parfois laborieusement : je pense à Benoît Gervais, David Boilley, Emmanuel Balanzat, Roger Bennett, Amine Cassimi et à quelques autres, souvent discrets et inconscients de l'importance de leur aide. Modestes, ils pensent sans doute n'avoir rien fait, mais je les remercie chaleureusement de ces petits riens.

Viennent enfin tous ceux qui m'ont encouragé, incité, motivé ou donné la liberté de réaliser ces travaux de R&D, sur la base de la confiance qu'ils m'accordaient sans toujours savoir où je désirais aller. Ils sont nombreux et dispersés. Certains sont des collègues, d'autres étaient déjà ou sont devenus des amis. Echanger avec eux sur des sujets professionnels, ne serait-ce que quelques heures, me conduit à penser que la science, même physique, est avant tout humaine.

Préambule

Avez-vous lu « Eloge du carburateur : Essai sur le sens et la valeur du travail » de Matthew B. Crawford ? Je vous engage à le faire pour vous permettre de mieux comprendre l'origine de la motivation qui m'a conduit à réaliser ce travail que rien ne m'obligeait à faire. Alors me direz vous, pourquoi y avoir passé tant d'heures, au risque de nuire à l'équilibre parfois fragile entre vie professionnelle et personnelle ? Ma réponse passe par l'expérience de M.B. Crawford qui expose dans son essai les raisons qui l'ont poussé à abandonner une activité de pure réflexion au profit d'une activité pragmatique, celle de la mécanique des motos (activité que j'apprécie aussi et pour les mêmes raisons). Sur les modèles anciens, le carburateur est souvent la pièce la plus sophistiquée. Sa réparation nécessite d'en comprendre le fonctionnement, et la justesse de cette compréhension est validée par le fonctionnement final de la moto. Pas d'échappatoire possible, de théorie invérifiable : tout dysfonctionnement, total ou partiel, vous obligera à remettre en cause votre maîtrise du problème. Si de plus vous abordez un carburateur sans notice technique, vous vous retrouvez à devoir effectuer la démarche de l'expérimentateur curieux : vous observez dans un premier temps, vous tentez des déductions sur le principe de fonctionnement, mettez à l'épreuve ce principe lors d'expériences qui consolident ou réorientent votre approche initiale et vous recommencez jusqu'à avoir atteint une description qui résiste à l'épreuve des faits. Tout doute doit être levé, car un doute peut être l'arbre qui cache une forêt d'incohérences, ce doute que vous pourriez être tentés d'ignorer en ayant deviné que sa levée remettra en question les fondements de ce que vous pensiez avoir compris. Et qui vous obligera à re-démonter le maudit carburateur, une fois de plus.

Les systèmes de production d'ions radioactifs constituent aussi des objets complexes, peut être plus complexes que les carburateurs, mais mon expérience personnelle m'a convaincu que la démarche nécessaire pour en comprendre le fonctionnement est comparable à celle employée pour aborder un carburateur. Ce parallèle n'a pas pour but de minorer le mérite des concepteurs de dispositifs de production d'ions radioactifs, ni de flatter les spécialistes des moteurs thermiques; il illustre simplement une opinion personnelle qui est que dans les deux cas, la rigueur de la démarche est fondamentale. Je ne jetterai certainement pas la première pierre à celui qui en manquera, ayant moi-même mérité de nombreuses pierres. Mais j'ai eu la chance de croiser quelques esprits éclairés qui ont préféré remplacer ces pierres par des conseils et des encouragements. Je tente à mon tour de faire profiter collègues et étudiants de cette attitude plus constructive car au-delà du plaisir éprouvé à comprendre, il existe une gratification à transmettre le plaisir de comprendre.

Puisse ce mémoire inciter le lecteur à rechercher cette gratification, si cela n'est pas déjà le cas.

*Le temps a été un noble adversaire ;
l'avidité des hommes en a fait mon ennemi.*

1	Introduction	8
1.1	Image d'un dispositif de production ISOL	15
1.2	Questions de départ.....	17
2	Besoins et contraintes	20
2.1	Restrictions des techniques utilisables pour les dispositifs	20
2.2	Conséquences sur les conditions des tests présentés dans ce document	21
3	Développement de dispositifs dédiés à la production d'ions radioactifs. 22	
3.1	Simple et multi-ionisation	22
3.2	ECS SPIRAL 1:.....	24
3.3	MONO1000:	26
3.4	Adaptation d'un magnétron sur une source d'ions ECR.	29
3.5	MINIMONO:	30
3.6	MINIMONO + cible 2kW SPIRAL 1.....	31
3.7	MINIMONO+ cible 400 W	33
3.8	TargISOL.....	34
3.9	MONOBOB : Conception d'une ECRIS à 2.45 GHz utilisant une structure magnétique créée par des bobines classiques.....	36
3.10	Développement d'une transition HF destinée à la source MonoBob.	39
3.11	Association de la source d'ions MONOBOB à la cible de production en UCx pour SPIRAL 2.....	40
3.12	Systèmes de production d'ions alcalins mono-chargés radioactifs	42
3.13	Méthode directe d'amplification de charge : NanoNaKE.....	45
3.14	Optimisation des performances d'une source à ionisation de surface : dispositif SISTHE.....	50
3.15	Source à Ionisation de Surface pour SPIRAL 2.....	56
3.16	Evolution de la cavité cible des ECS de SPIRAL 1 :	58
4	Temps de transformation des atomes en ions dans les dispositifs de production d'ions radioactifs ISOL	60

4.1	Introduction.....	60
4.2	Injection d'un pulse de gaz issu d'un jet.....	61
4.3	Mesure de temps de réponse à l'aide d'une vanne de gaz piézo-électrique.	63
4.4	Développement d'un système de mesure de temps de transformation dans une source ECR.....	63
4.5	Remise en question de l'approche du temps de réponse dans les sources ECR	65
4.6	Mesure de temps de réponse pour différentes sources ECR d'ions mono-chargés.	68
4.7	Amélioration de la description de la réponse en temps.	70
4.8	Image du processus du temps de transformation des atomes en ions dans un ensemble cible-source	71
4.9	Comportement temporel de la transformation atome-ions dans l'ECR de SPIRAL 1.....	73
4.10	Réponse en temps de la diffusion dans une cible de graphite : collaboration TARGISOL.....	76
4.11	Temps du processus d'augmentation de charge dans l'ECS NanoNaKE.....	79
4.12	ECS ECR pour SPIRAL 2.	80
4.13	Temps de transformation et efficacité de l'ECS ECR pour SPIRAL 2.	81
4.14	Ce que l'on peut déduire de la forme des réponses enregistrées.....	83
4.15	Evaluation de l'efficacité d'effusion-ionisation des isotopes radioactifs de gaz dans l'ECS ECR	85
4.16	Système d'étude des sources à ionisation de surface : le dispositif SISTHE	87
4.17	Estimation de l'efficacité d'effusion-ionisation d'alcalins dans l'ECS SIS de SPIRAL 2.....	92
5	Conclusion.....	94
6	<i>Perspectives.....</i>	96

1 Introduction

Les éléments chimiques que nous connaissons sur terre sont de l'ordre d'une centaine. Leur nom correspond au nombre de protons que renferme leur noyau. Ce dernier renferme aussi des neutrons dont le nombre définit l'isotope de cet élément. Les isotopes de notre environnement sont pour la plupart stables. Leur abondance relative découle du processus de nucléosynthèse, passée et présente et contient donc une information sur leur origine.

En 1934, trente huit ans après la découverte par H. Becquerel de la radioactivité, Frédéric et Irène Joliot-Curie mettent en évidence la possibilité de créer un noyau radioactif. Cette découverte fournit la possibilité aux scientifiques de se lancer dans l'exploration du processus de nucléosynthèse, en reproduisant artificiellement les ascendants des noyaux existants qui pour la plupart ont disparu du fait de leur courte durée de vie. Depuis, ils ont mis en évidence l'existence de plusieurs nouveaux isotopes par an¹. La connaissance que nous avons aujourd'hui des noyaux stables et radioactifs nous permet d'en donner une vue globale en les positionnant sur un damier horizontal dont l'un des axes représente le nombre de neutrons qu'ils comportent et l'autre axe le nombre de protons. Si l'inverse de leur durée de vie est reportée sur l'axe vertical, une forme de vallée apparaît, dont le fond est occupé par les noyaux stables (en noirs sur la Figure 1).

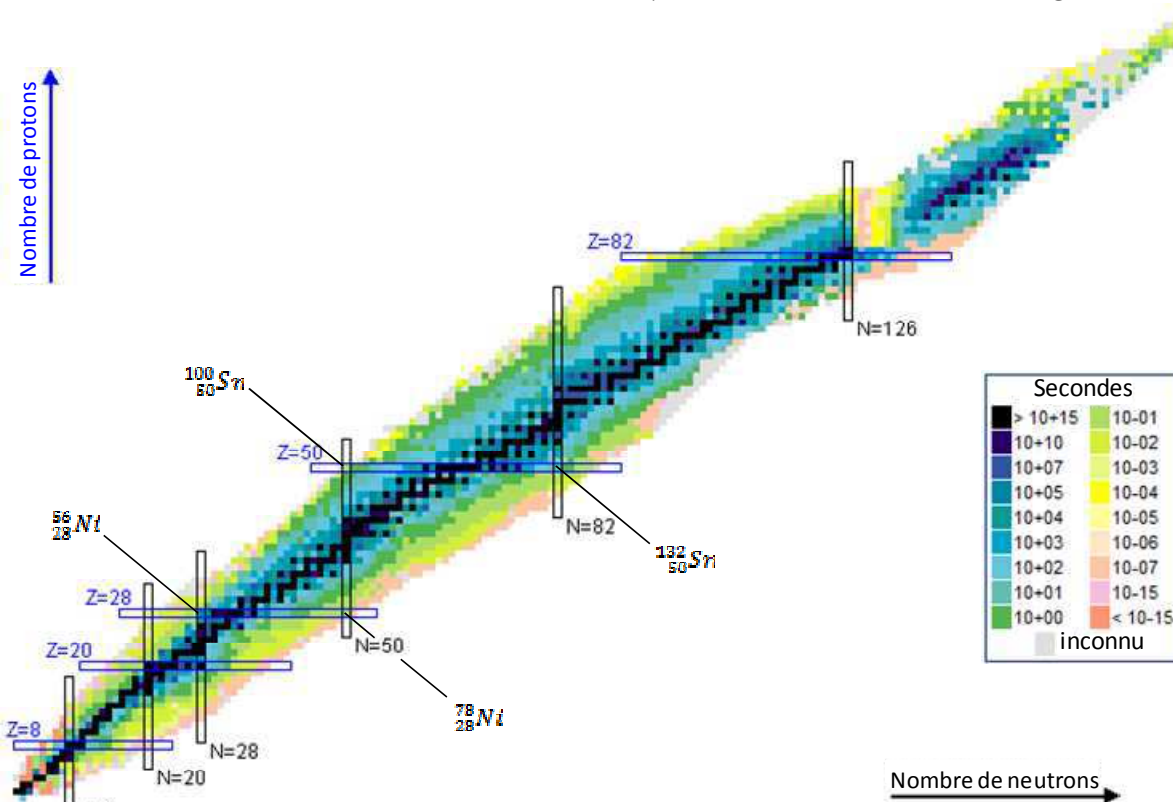


Figure 1 : Carte des noyaux. Les couleurs dépendent de leur durée de vie. Figure extraite de la référence [2].

A l'image d'un alpiniste qui se lancerait dans l'ascension des flancs embrumés de la vallée, les ingénieurs et physiciens tentent d'accéder à des régions de cette carte

particulièrement escarpée. La difficulté est double : l'escarpement grandit souvent lorsque l'on s'éloigne du fond de la vallée. Les noyaux se désintègrent plus vite, il est donc plus difficile de les observer. Ensuite, leur existence est artificielle. Avant de pouvoir les observer, il faut les créer et leur probabilité de synthèse par réaction nucléaire diminue, grossièrement d'un facteur 10 à chaque case franchie en s'éloignant de la vallée de stabilité. Bien qu'éloignés de la vallée, certains noyaux ($^{11}_3\text{Li}$, $^{22}_6\text{C}$, $^{14}_8\text{O}$, $^{32}_{12}\text{Mg}$, $^{42}_{14}\text{Si}$, $^{48}_{20}\text{Ca}$, $^{56}_{20}\text{Ca}$, $^{78}_{28}\text{Ni}$, $^{100}_{50}\text{Sn}$, $^{132}_{50}\text{Sn}$) présentent une stabilité remarquable au regard de leurs voisins : des nombres particuliers de protons ou de neutrons dit magiques (2, 8, 20, 28, 50, 82, 126, 184 ?) leur confèrent une durée de vie inattendue. L'intérêt suscité par ces dépressions locales dans le paysage de la vallée est à l'origine de nombreux efforts réalisés par les scientifiques pour y accéder.

En 1951, Otto Kofoed-Hansen et Karl Ove Nielsen du Niels Bohr Institute à Copenhague³ mettent au point un dispositif qui permet d'améliorer la réponse au besoin de statistique des expériences. Ce premier système conduit à l'observation d'une activité de quelques milliers de coups par seconde. Appelé par la suite « séparateur d'isotopes en ligne », il va permettre une accélération de l'exploration de la carte des noyaux. Dès 1964, un dispositif de production est développé au CERN. Il a depuis subi de nombreuses transformations mais son principe est resté le même : un faisceau d'ions primaires frappe les noyaux d'une cible solide. Les produits de réactions sont stoppés dans la cible, de laquelle ils sortent pour être ionisés puis séparés. Cette méthode a depuis été reprise dans de nombreux laboratoires. La revue des installations existantes ou à venir est régulièrement présentée lors de la conférence internationale EMIS (ElectroMagnetique Isotope Separators) dont l'organisation et le recueil⁴ des contributions constituent la plateforme la plus importante d'échange d'informations dans ce domaine.

Le désir d'étudier des noyaux toujours plus exotiques a conduit au développement d'une autre méthode, appelée par la suite « en vol », dont la première utilisation^{5,6} a eu lieu en 1985 à Berkeley. Elle consiste à envoyer un faisceau d'ions de haute énergie (typiquement supérieure à 100 MeV par nucléon) sur une cible suffisamment mince pour que les produits de réaction issus de la collision noyaux incidents-noyaux cibles continuent leur course en aval de la cible jusqu'à leur lieu d'étude. Par rapport à la technique ISOL, cette technique présente l'avantage d'être plus rapide et donc de mettre à la disposition des physiciens des noyaux qui peuvent avoir une durée de vie inférieure à une milliseconde, durée qui constitue grossièrement la limite inférieure de la méthode ISOL. En contrepartie, la dispersion en énergie des noyaux produits est importante, la sélectivité en sortie de cible est déterminée par les conditions d'irradiation et par les processus réactionnels, et les intensités sont faibles. La méthode ISOL souffre moins de ces aspects : la dispersion en énergie est fixée par le système d'ionisation (de l'ordre de quelques eV), le dispositif de transformation est souvent conçu pour bénéficier d'une sélectivité chimique des atomes produits, les intensités peuvent être importantes (si la durée de vie est suffisamment longue) et les qualités optiques sont comparables à celles obtenues en aval d'une source d'ions stables. Chaque méthode a ses avantages et ses limites, dont une confrontation ainsi que les résultats marquants obtenus avec chaque

méthode sont présentés dans la référence [7]. La complémentarité des méthodes fait qu'une installation telle que GANIL/SPIRAL2, présentée un peu plus loin, est conçue de façon à pouvoir utiliser chacune d'elle.

L'utilisation de la méthode ISOL pour la production d'éléments réfractaires implique des pertes importantes lors de la transformation atomes-ions dues au temps important de résidence des atomes qui entrent en contact avec les matériaux constitutifs du dispositif. Une méthode de production alternative⁸ consiste à stopper les produits de réaction dans une cellule remplie de gaz rare. L'état de charge des ions radioactifs décroît alors par échange de charges avec le gaz jusqu'à ce qu'ils soient mono-chargés. Ils sont entraînés vers la sortie de la cellule où ils sont accélérés. Cette façon de procéder atténue l'influence de la réactivité chimique des éléments produits sur le processus de production et permet dans les meilleurs cas la production de quelques dizaines de milliers d'ions réfractaires par seconde. Cette technique présente aussi des limitations⁹ : son efficacité est fortement dépendante de la pureté du gaz et peut être limitée par la charge créée dans le gaz.

L'accès aux noyaux proches des frontières au-delà desquelles les amas de nucléons ne sont plus liés est souvent difficile via un processus de réactions nucléaires à partir de noyaux stables. Le déséquilibre entre nombres de protons et de neutrons est tel que la probabilité de production et la durée de vie des noyaux sont si faibles que leur observation est très difficile. En théorie, une augmentation de l'intensité du faisceau primaire est toujours possible et conduit à une augmentation du nombre de noyaux produits dans les mêmes proportions. Au-delà d'une certaine intensité se posent cependant des problèmes techniques difficiles à contourner, tels que la tenue des matériaux cibles exposés à de fortes températures et à de forts rayonnements. De nombreuses études des matériaux destinés aux cibles de « forte puissance » sont toujours en cours mais la puissance déposée dans une cible solide reste limitée par la température de fusion du matériau dont le rayonnement et la conduction limitent le refroidissement. Dans le cas des systèmes ISOL, l'idée d'une cible liquide refroidie par circulation dans un échangeur semble alors très attractive. Elle est à l'étude à ISOLDE/CERN¹⁰.

Une autre solution consiste à scinder la cible en deux parties, la première supportant la puissance du faisceau primaire et pouvant être refroidie, la seconde relâchant les noyaux et devant être maintenue à température élevée. Ce principe avait été mis en application dans le cadre de GANIL/SPIRAL1 pour la production d'isotopes de ${}^{6,8}\text{He}$ à partir d'un faisceau de ${}^{13}\text{C}$ stoppé dans la première partie de la cible¹¹. Un découplage de la puissance utile à la réaction et de la puissance du faisceau incident peut aussi être obtenu par l'utilisation d'un convertisseur ; dans le cas de GANIL/SPIRAL2, un faisceau de deutons de 200 kW (40 MeV@5 mA) est arrêté dans un disque de graphite tournant. Le flux de neutrons émis en aval du disque est en partie arrêté dans une cible d'UCx et induit la fission de l'U. Le dépôt de puissance apporté par les neutrons à la cible d'UCx est faible (qlq centaines de W) comparé à la puissance du faisceau primaire.

La solution envisagée par l'Université de Pékin dans le cadre du projet « Beijing ISOL¹² » limite aussi la puissance du flux primaire déposée dans la cible. La cible, à base d'uranium, serait introduite au cœur d'un réacteur. Le taux de fission attendu est plus important que celui des installations actuelles utilisant un faisceau primaire d'ions mais les difficultés liées à l'endommagement sous neutrons de l'ensemble cible-source constituent un défi technologique qui reste à relever.

La dernière solution ISOL que j'évoquerai est celle qui consiste à utiliser un faisceau d'ions légers suffisamment énergétiques pour qu'ils puissent traverser la cible de production sans s'y arrêter, tout en induisant un nombre de réactions important. Cette solution a été adoptée par les installations CERN/ISOLDE (protons de 1.4 GeV) et dans une moindre mesure par TRIUMF/ISAC (puisque l'énergie des protons n'est que de 500 MeV). Depuis son démarrage en 1964, ISOLDE a eu la chance de pouvoir disposer d'un faisceau de protons dont l'énergie a pu être régulièrement augmentée, jusqu'à une valeur qui devrait atteindre 2 GeV dans le cadre du projet en cours HIE-ISOLDE. A cette énergie, moins de 10% de la puissance du faisceau incident (<20kW) seront déposés dans la cible¹³, alors que simultanément la section efficace de production aura significativement augmenté¹⁴.

Quels que soient le processus réactionnel choisi et l'ambition des installations présentes et à venir dans les vingt prochaines années, il semble difficile d'obtenir en une seule étape un taux de production de noyaux très éloignés de la vallée de stabilité suffisamment important pour permettre leur observation. Un processus en deux étapes⁷, rappelé par I. Tanihata, permettrait à partir de noyaux riches en neutrons produits par la méthode ISOL (⁹¹Kr par exemple) de produire des taux importants de noyaux très riches en neutrons tel que le ⁷⁸Ni par fragmentation en vol. Il faudrait pour cela disposer d'un post-accélérateur qui amènerait les noyaux de ⁹¹Kr issus de l'installation ISOL à une énergie de l'ordre de 100 MeV par nucléon, ce qu'aucune installation ne permet à ce jour.

Pour augmenter la statistique des expériences, une solution complémentaire à l'augmentation d'intensité ou d'énergie du faisceau primaire réside dans l'optimisation de l'efficacité du système de production (séparateur compris) et des détecteurs. Cette optimisation commence par celle du choix du couple projectile-cible (énergie, noyaux), déterminant pour le taux de production dans la cible et pour le taux de production des polluants potentiels. La Figure 2 montre clairement que dans la carte des noyaux les produits de réactions accessibles sont fortement dépendants du processus réactionnel.

La deuxième étape réside dans l'optimisation de l'exploitation des noyaux produits. Un rappel de ces principes est fait dans la référence [15] qui mentionne aussi que la disponibilité et l'usage en parallèle de plusieurs faisceaux radioactifs peuvent constituer des critères supplémentaires d'appréciation d'une installation. Les performances des détecteurs sont dans tous les cas déterminantes.

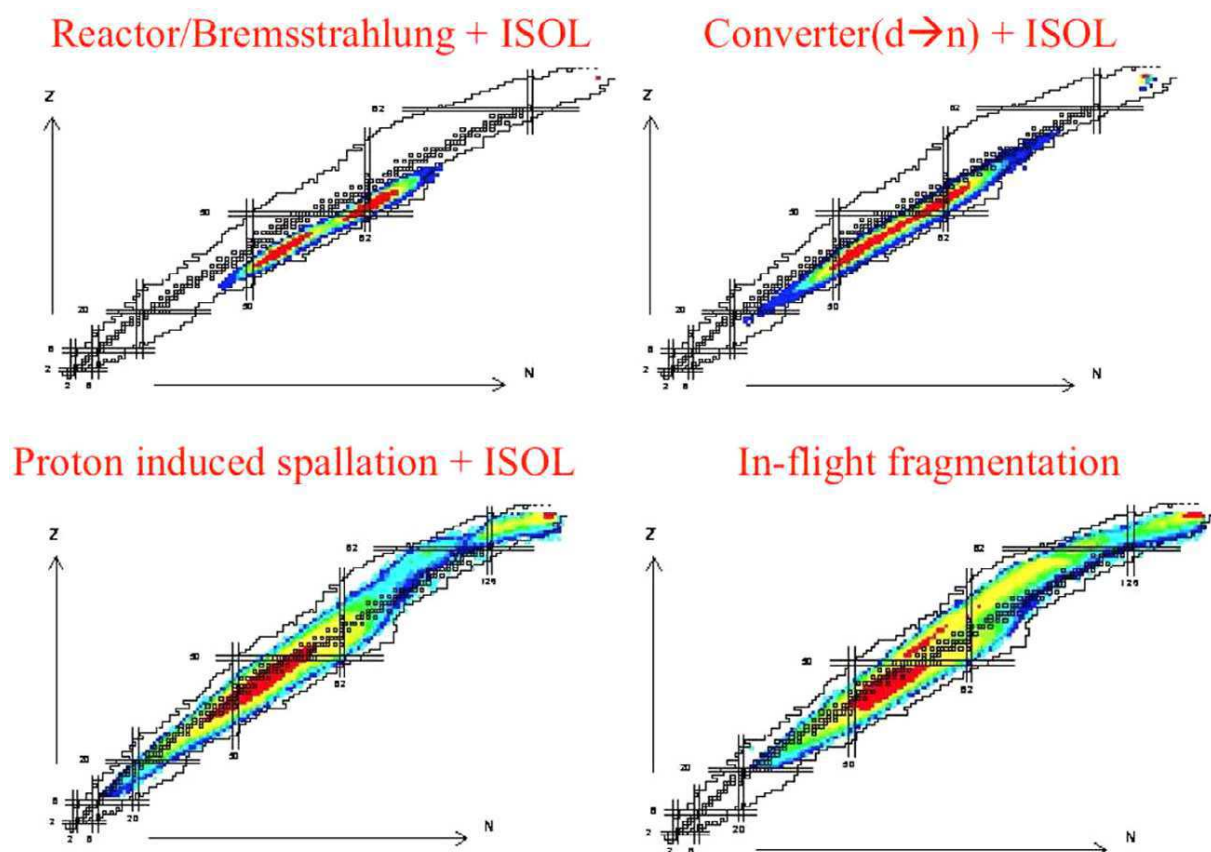


Figure 2 : Sections efficaces relative de production pour différents mécanismes réactionnels avec de l' ^{238}U . L'énergie est de 1 MeV pour les neutrons de réacteur, de 50 MeV pour les neutrons en aval d'un convertisseur, de 1 GeV pour les protons de spallation, et de 1 GeV/n pour la fragmentation. Figure extraite de la référence [15], déduite de la référence [16].

Dans le cas de la méthode « en vol », l'acceptance du séparateur en angle et en énergie, sa transmission et sa sélectivité sont primordiales.

Dans le cas de la méthode ISOL, ce sont l'efficacité de transformation atomes-ions, la sélectivité, l'efficacité de transport et le pouvoir de séparation qui sont importantes. Les travaux consacrés à ces sujets suscitent beaucoup d'intérêt et donne toujours lieu à de nouveaux dispositifs. Puisque les frontières de la vallée sont encore loin d'être atteintes, il est probable que cette émulation soit entretenue encore durant plusieurs (dizaines) d'années.

Enfin, une question propre à la recherche et donc implicite dans tous ces travaux est celle de l'efficacité de la démarche suivie pour atteindre un but, qu'il s'agisse d'une installation destinée à la production d'ions radioactifs ou d'un de ses dispositifs élémentaires. Bien qu'elle n'agisse pas directement sur le taux d'ions produits, elle aidera probablement à une optimisation des ressources et donc à l'obtention d'un résultat dans un délai plus court.

A ce jour, de nombreux projets d'installations de production d'ions radioactifs sont à l'étude et une dizaine d'installations délivrent régulièrement des faisceaux principalement en Europe, en Amérique du Nord et en Asie. Une revue récente¹⁷ en

donne les principales caractéristiques et rappelle que le comité Européen NuPECC (Nuclear Physics European Collaboration Committee) recommande la construction des installations¹⁸ GSI/FAIR, GANIL/SPIRAL2, CERN/HIE-ISOLDE et INFN/SPES qui constitueront des étapes importantes pour le projet EURISOL.

C'est dans ce cadre, et plus particulièrement dans celui des dispositifs de production ISOL des installations GANIL/SPIRAL1 et GANIL/SPIRAL2 que les travaux présentés dans ce mémoire s'inscrivent.

SPIRAL 1 est un Système destiné à la Production d'Ions Radioactifs Accélérés en Ligne utilisant la méthode ISOL (voir schéma Figure 3). Un faisceau primaire d'ions lourds est accéléré à une énergie allant jusqu'à 95 A.MeV par trois cyclotrons en cascade. Il est envoyé sur une cible de graphite avec une puissance maximum de 6 kW. Les ions incidents vont du carbone à l'uranium. Les noyaux radioactifs formés par fragmentation sont alors multi-ionisés puis ré-accélérés à une énergie maximum de 34 keV par état de charge. Ils peuvent être utilisés par l'installation LIRAT (Ligne d'Ions RadioActifs à Très basse énergie), et pourront aussi être dirigés vers les dispositifs expérimentaux de l'équipement DESIR (Désintégration, Excitation et Stockage d'Ions Radioactifs) relié aux lignes de faisceaux de basse énergie des installations SPIRAL 1 et SPIRAL 2. Les faisceaux peuvent aussi être post-accélérés par le cyclotron CIME à une énergie maximum de 25 A.MeV avant d'être envoyés dans différentes salles d'expériences.

Depuis son démarrage, SPIRAL 1 délivre des ions produits à partir de noyaux d'éléments gazeux (gaz rares de l'He au Kr) ou formant des molécules de gaz (CO par ex.). La limitation de la palette de faisceaux disponibles avec l'ECS existant a rapidement motivé la recherche d'autres solutions dont certaines sont décrites dans ce mémoire. Contraints par les besoins d'exploitation, leurs premiers tests en ligne ne seront réalisés qu'au cours de l'année 2013. Une seconde étape (projet upgrade SPIRAL 1¹⁹) dont l'achèvement est prévu fin 2015 consistera à implanter un amplificateur de charge en sortie de casemate. Le but est d'étendre la palette d'ions disponibles aux ions issus d'éléments condensables. Dans la casemate, le système de production actuel pourra être remplacé par des systèmes basés sur l'association de cibles variées (autres que le graphite utilisé jusqu'alors) à une source FEBIAD (Forced Electron Beam Ionization by Arc Discharge) ou à ionisation de surface. L'amplificateur de charge de type Phoenix Booster²⁰ développé au LPSC de Grenoble permettra d'augmenter la charge des ions issus des nouveaux dispositifs de production jusqu'à une valeur adaptée à l'injection des ions dans le cyclotron post-accélérateur.

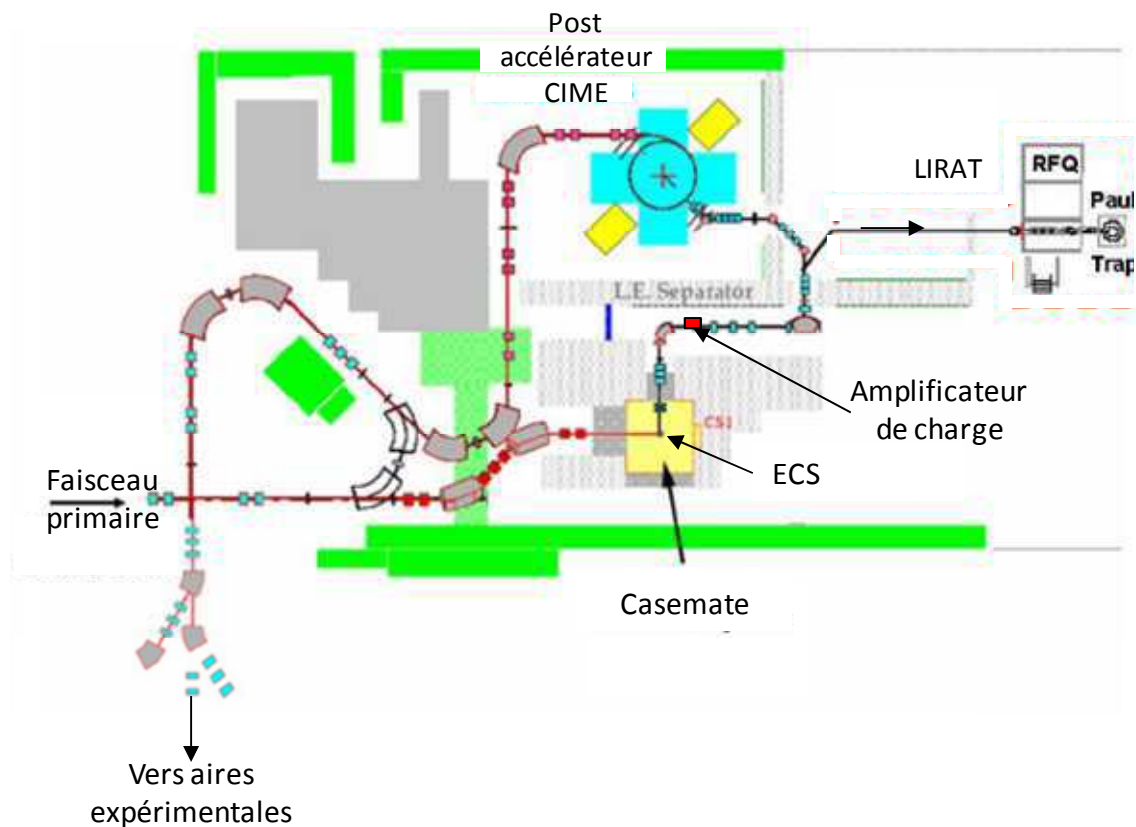


Figure 3 : Schéma du dispositif SPIRAL 1 à GANIL.

SPIRAL 2 a pour but²¹ final de produire des ions radioactifs de masse plus importante que SPIRAL 1, à savoir de la masse ~ 60 à ~ 140 . Le projet (voir Figure 4) a été scindé en deux phases. La première comprend la construction de l'accélérateur linéaire et la construction d'aires expérimentales qui renfermeront le dispositif expérimental S³ (Super Séparateur Spectromètre) destiné à la production d'ions radioactifs par la méthode en vol, et le dispositif expérimental NFS (Neutron For Science). Au démarrage l'accélérateur délivrera soit un faisceau de deutons (40 MeV@5mA), soit un faisceau d'ions lourds de rapport masse sur charge égale à 3 à une énergie de 14.5 A.MeV. La seconde phase consistera en un système de production ISOL qui utilisera les principes de fusion-évaporation, fission et fragmentation. Les faisceaux demandés dans les lettres d'intention²² des futurs utilisateurs ont placé la cible d'UCx comme celle qui devait être développée en priorité. Le faisceau de deutons sera envoyé sur un convertisseur en graphite dans lequel ils seront stoppés. Le flux de neutrons émis en aval du convertisseur pénétrera une cible d'UCx. Les produits issus de la fission induite de l'uranium seront neutralisés dans le matériau cible puis ionisés et accélérés. En fonction de l'énergie finale requise, leur charge pourra être augmentée à l'aide d'un « charge breeder » similaire à celui employé pour SPIRAL 1.

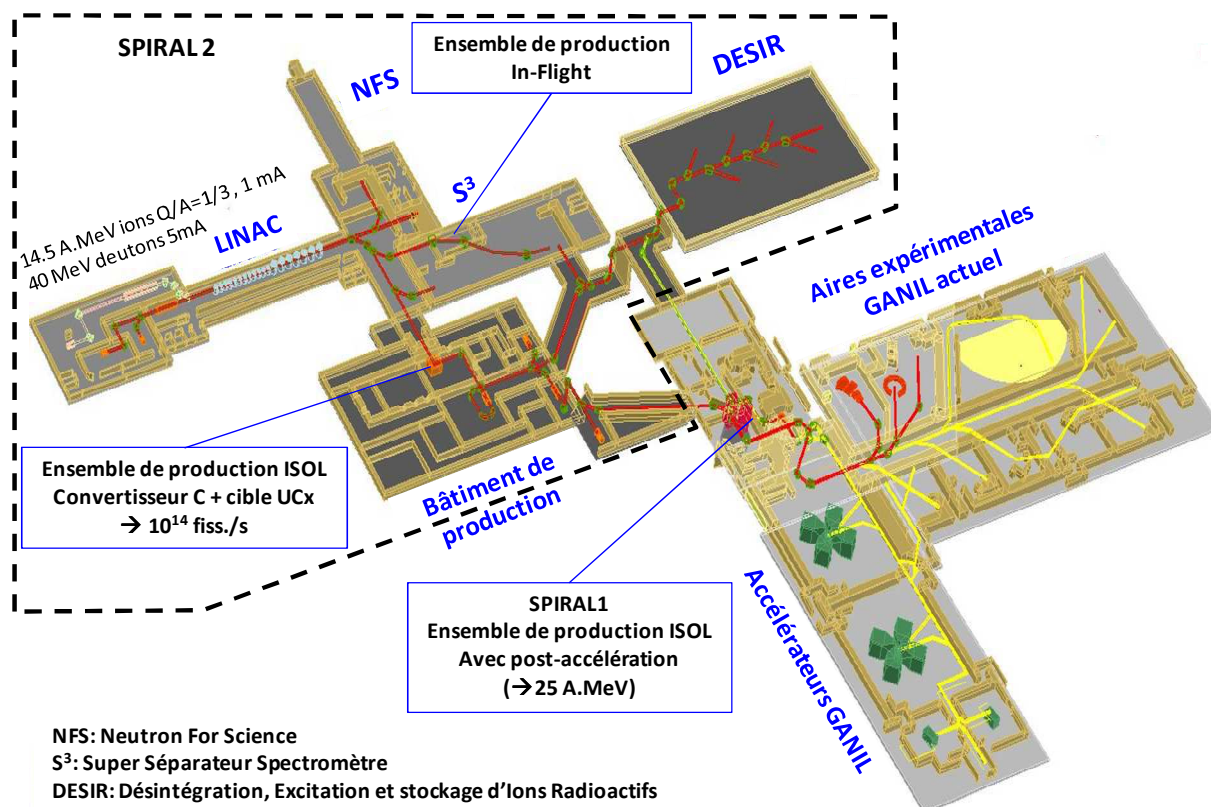


Figure 4 : Schéma du dispositif SPIRAL 2 associé à l'installation GANIL existante.

Les faisceaux d'ions les plus souvent demandés par les utilisateurs pour cette future installation sont des faisceaux de ^{94}Kr (212 ms), ^{132}Sn (39.7 s), ^{140}Xe (13.6 s), ^{142}Xe (1.23 s), et ^{78}Ni (0.11 s). Les dispositifs ISOL développés en priorité ont donc pour but de produire le plus grand nombre de ces noyaux.

La suite de ce mémoire présente le cheminement qui a été suivi pour concevoir, améliorer, caractériser et optimiser les Ensembles Cibles-Sources des systèmes de production ISOL des installations SPIRAL 1 et SPIRAL 2.

1.1 Image d'un dispositif de production ISOL

Pour permettre au lecteur d'appréhender le cœur du sujet, je lui propose d'imaginer une boîte, qu'on appellera ECS dans laquelle des noyaux radioactifs sont créés à la suite de réactions nucléaires induites par la collision de noyaux d'un faisceau d'ions avec les noyaux d'une cible solide. La cible est suffisamment épaisse pour que des noyaux radioactifs soient stoppés dans la matière de la cible. Les voies que les noyaux peuvent emprunter pour disparaître de la boîte sont multiples. La voie souhaitée par le concepteur est celle qui les amènera à l'état d'ions sortis de la boîte. Elle consiste à emprunter trois étapes : la diffusion en dehors du matériau cible, l'effusion de la cible à la source

d'ionisation et l'ionisation, avant de sortir de la source et d'être accélérés pour former un faisceau. Au désespoir du concepteur, ils peuvent changer de voie à chaque instant de leur cheminement et emprunter une voie qui retardera leur instant de sortie. Dans tous les cas, si le temps de transformation d'un noyau en ion est supérieur à sa durée de vie, le noyau ne sortira jamais du dispositif. Si le concepteur désire que son dispositif soit « efficace », c'est-à-dire que la plus grande partie des noyaux créés atteignent l'état d'ions accélérés, il est nécessaire qu'il optimise la probabilité qu'ils empruntent la voie la plus courte en temps. Pour cela, avant de concevoir son dispositif, il lui faut comprendre la relation qui existe entre la probabilité que les noyaux empruntent cette voie et les paramètres qui la gouvernent.

Cette question est en grande partie à l'origine de ce travail.

Il a été effectué principalement pour répondre aux besoins du GANIL et dans un cadre contraint par la physique des processus réactionnels des collisions, par les possibilités techniques de conception, la réglementation liée à la sécurité et particulièrement à la sûreté des installations, et enfin par les ressources disponibles. Ce cadre est décrit au Chapitre 2, ainsi que certaines solutions adoptées pour en relâcher les contraintes.

Il a nécessité la réalisation de nombreux dispositifs techniques qui sont décrits succinctement au Chapitre 3. L'image de la dynamique d'un ensemble cible-source (Chapitre 4) s'est construite progressivement, au cours de l'utilisation de ces dispositifs.

Ces développements résultent tous de travaux en équipe dont j'ai été acteur ou moteur. Seule la démarche, les principaux résultats et conclusions sont présentés. Le détail est publié dans les références fournies en début de paragraphe, ainsi que les noms des étudiants ayant contribué aux travaux. Pour certains d'entre eux, il serait plus juste d'écrire « ayant mené les travaux », leur professionnalisme n'ayant pas attendu l'âge pour s'affirmer.

Le but ultime de ce travail est de construire des ensembles cible-source efficaces pour délivrer de façon régulière, fiable et sûre des faisceaux d'ions radioactifs à des expériences de physique. Bien que les travaux aient été principalement menés pour répondre à l'attente des installations de production SPIRAL 1 et SPIRAL 2, ils ont été éclairés par ceux menés dans d'autres laboratoires et parfois en collaboration avec eux. Je souhaite en retour qu'il puisse aider au développement de systèmes de production d'ions radioactifs au-delà du GANIL.

1.2 Questions de départ.

Trois questions étaient présentes au début de ce travail :

- Lorsque l'efficacité de transformation atomes-ions est significativement inférieure à 100%, n'y a-t-il pas moyen de l'augmenter avant d'avoir recours à une augmentation du taux de production de noyaux radioactifs dans la cible pour augmenter le taux de production d'ions radioactifs en sortie d'un ECS ? L'attente des expériences de physique vis à vis des dispositifs de production n'est pas qu'ils soient efficaces, mais qu'ils délivrent un flux de noyaux radioactifs suffisamment important pour satisfaire au besoin de statistique des expériences. Pour y répondre, une solution qui peut sembler simple au premier abord consiste à adapter le taux de production au flux d'ions requis par les utilisateurs, en adaptant l'intensité du faisceau primaire et la cible de production. Cette solution peut parfois conduire au résultat attendu ; elle ne le peut pas toujours. De plus, elle engendre une production de radioactivité inutile et dont l'impact sur le coût de construction et de fonctionnement d'une installation peut être très important. Plutôt que d'avoir recours à cette solution d'échelle, j'ai préféré dans un premier temps tenter de tirer le meilleur parti des noyaux produits en maximisant l'efficacité de conversion en ions. L'idée n'était pas nouvelle, mais je pensais qu'il restait une marge de progrès. Une fois le maximum atteint, et si celui-ci est insuffisant, il est éventuellement possible de recourir à une augmentation d'intensité du faisceau primaire.
- Puisque les noyaux radioactifs ont une durée de vie limitée, il faut que le dispositif de transformation soit plus rapide que la décroissance radioactive. Pour s'en assurer, il fallait caractériser le temps des processus impliqués pour évaluer leur contribution relative au temps de transformation. Le but à atteindre était clair. Il restait à trouver une méthode et à la mettre en oeuvre. Elle est décrite au chapitre 4.
- La troisième question dépasse le cadre de ce travail. Un dispositif de production d'ions radioactifs tel que décrit succinctement ci-dessus fait intervenir un nombre important de processus : production, diffusion, effusion, ionisation, eux-mêmes basés sur un grand nombre de processus plus « simples » : réactions nucléaires, réactions chimiques, diffusion dans la matière amorphe, cristalline, joints de grains, pores, effusion dans les cavités microscopiques, dans les défauts de surface, volumes macroscopiques, collage, diffusion en surface, ionisation par collision avec un électron, avec un ion, neutralisation, processus eux-mêmes constitués de mécanismes plus élémentaires... Cette liste est loin d'être exhaustive. Est-il nécessaire de maîtriser tous ces paramètres pour prédire un comportement macroscopique ? En supposant que la valeur de chaque paramètre microscopique en jeu soit connue pour un état donné du système, la somme des erreurs commises sur

la valeur de chaque paramètre sera-t-elle suffisamment faible au regard de la précision requise sur l'état macroscopique du système ? Si ces paramètres sont essentiels, a-t-on les moyens en termes de ressources financière et humaine, pour chaque dispositif, de mener les études qui permettront de les déterminer (en supposant que cela soit physiquement possible)? Le délai d'études sera-t-il compatible avec l'échéance de l'expérience de physique envisagée et, plus généralement, la réponse à la question scientifique nécessitant la conception du dispositif de production ne sera-t-elle pas obtenue préalablement par une autre voie ? A ce jour, l'enjeu sociétal que constituent les connaissances issues des expériences menées à l'aide de ces dispositifs ne semble pas suffisamment important pour que les moyens requis par une étude exhaustive lui soient attribués. Ce constat conduit à la nécessité d'optimiser les ressources mises à notre disposition pour concevoir un dispositif de production, et conduit naturellement à nous interroger sur la pertinence de la démarche des travaux menée pour le concevoir. J'ai la conviction que l'étude des mécanismes élémentaires permettra de faire évoluer les systèmes de production à long terme et de façon importante et qu'à ce titre, il faut les poursuivre. L'expérience m'a aussi convaincu que pour le développement de dispositifs de production d'ions radioactifs à moyen terme (<10 ans), nous ne pourrons pas mener intégralement cette démarche et qu'il est donc nécessaire d'en suivre une autre. Celle que j'ai choisie est la suivante : puisque le temps est un des principaux responsables de la perte de noyaux radioactifs, et que le but de ces dispositifs est d'en perdre le moins possible, j'ai concentré mon attention sur la caractérisation en temps des processus qui interviennent dans les dispositifs de production, en partant du global vers le particulier. L'étude en temps la plus globale est celle de la réponse du système dans les conditions d'utilisation finales. Un faisceau primaire d'ions frappe une cible. Des atomes radioactifs sont produits, diffusent, effusent, sont ionisés puis accélérés à leur sortie de la source. Le temps de transformation est le temps compris entre leur instant de formation dans la cible et leur instant de sortie de la source. La mesure du temps de transformation prend en compte tous les processus, ainsi que la décroissance radioactive des noyaux. Une mesure moins globale consiste à mesurer le temps de transformation en ions de noyaux stables implantés dans la cible et qui n'ont pas subi de réaction nucléaire. Si ceux-ci font partie de la même espèce chimique que les noyaux radioactifs désirés et que leur masse est proche, la convolution a posteriori du temps de transformation et du temps de décroissance doit permettre de déterminer le temps de transformation global. A un niveau de découpage des processus encore inférieur, il est tentant de séparer les contributions en temps des processus de diffusion, effusion, ionisation. Une convolution a posteriori des réponses individuelles et de la décroissance radioactive devrait de nouveau permettre de reconstituer la réponse globale. C'est à ce niveau que correspondent les études présentées **dont le fil conducteur est le temps de réponse des processus.**

Ces études ont aussi parfois permis d'extraire des données de niveau inférieur (comme par exemple le temps de résidence d'atomes sur des parois) lorsque leur extraction était « simple » ou lorsque j'ai succombé à la curiosité au risque de me détourner momentanément de mon objectif.

A partir de l'association de mesures de l'efficacité de production d'ions radioactifs et de modèles détaillés, des travaux antérieurs ont tenté de déterminer les paramètres de différents processus, jusqu'à des processus microscopiques, en laissant un degré de liberté important à de nombreux paramètres physiques microscopiques. Mon goût pour les expériences simples desquelles il est possible d'extraire des résultats physiques via un minimum d'interprétations ne m'a pas incité à utiliser un tel modèle.

J'ai tenté de minimiser l'importance de l'ordre de lecture des chapitres. Si le lecteur désire aller au plus vite au cœur du sujet, je lui suggère de commencer par le chapitre 4. Il y trouvera de nombreux renvois vers le chapitre 3 où sont décrits des dispositifs techniques avec lesquels les mesures présentées au chapitre 4 ont été effectuées. Le chapitre 2 donne simplement le cadre de ce travail.

2 Besoins et contraintes

2.1 Restrictions des techniques utilisables pour les dispositifs

Faire diffuser des atomes stables en dehors d'une cible puis les ioniser peut être fait de multiples façons. La diversité des techniques utilisables est directement liée à la diversité des caractéristiques physico-chimiques des atomes qui conditionnent leur comportement dans un dispositif de production. Ces caractéristiques ainsi que la forte température de la cible limitent les matériaux adéquats. Les choix techniques restent cependant ouverts et les contraintes réglementaires relèvent de la sécurité « ordinaire ».

Dans le cas de la production de noyaux radioactifs, deux phénomènes supplémentaires restreignent le choix des techniques envisageables : l'endommagement des matériaux sous irradiation et la production de radioactivité. Dans le cas de noyaux de longue durée de vie, il est possible de protéger une partie du dispositif de l'irradiation en le plaçant à distance de la cible et derrière un écran. Le temps de transit des atomes de la cible à la source n'entraîne alors que peu de pertes par décroissance radioactive. Dans le cas de noyaux de courte durée de vie, souvent les plus attractifs pour la communauté de physiciens nucléaires, l'éloignement de la cible et de la source d'ionisation entraîne des pertes importantes. On place alors la source à proximité de la cible et l'ensemble du dispositif de production est soumis aux dégâts causés par irradiation. Sa durée de fonctionnement et ses performances sont diminuées, et sa gestion est plus complexe. Le principe technique de transformation atome-ions devra être choisi pour sa « robustesse » sous irradiation, mais l'ECS devra tout de même être régulièrement remplacé, et l'environnement devra permettre la gestion du procédé sous faisceau et lors des périodes de maintenance et de remplacement dans le respect des exigences de sûreté : les interventions humaines dans le voisinage de l'ECS seront conditionnées aux règles de radioprotection, et parfois totalement interdites. Concrètement, cela implique de concevoir simultanément l'ensemble constitué par l'ECS et son environnement, et bien souvent de rendre une grande partie des opérations réalisables à distance. La technique retenue pour l'ECS, même si elle paraît simple, est donc déterminante pour le coût de construction et d'exploitation, principalement via l'activité produite qui fixera le nombre de barrières radiologiques statiques et dynamiques, les systèmes de traitement des effluents liquides et gazeux, les voies de retraitement des déchets, le système de surveillance, d'accès, les procédures opérationnelles et donc les ressources financières et humaines nécessaires. Les choix de conception des ECS, de par leurs conséquences, sont donc beaucoup plus restreints que ce qu'ils seraient sans production de radioactivité.

Parmi les dispositifs présentés dans ce mémoire, il y a lieu de distinguer les dispositifs destinés à des tests de principes, dispositifs dont tous les matériaux ne répondent pas aux critères ci-dessus, des dispositifs destinés à une production en ligne (sous irradiation) de longue durée qui devront y répondre. L'expression « longue durée » étant très subjective, il est utile d'indiquer que la durée d'exploitation des ECS ISOL est

dans les meilleurs des cas de l'ordre de quelques semaines. Dans le cas du projet SPIRAL 2, la durée d'exploitation visée par ECS est de trois mois.

Quelques exemples de solutions mises en œuvre en réponse à ces contraintes seront donnés au fil du chapitre 3.

2.2 Conséquences sur les conditions des tests présentés dans ce document

Les contraintes précédentes sont en grande partie à l'origine de la différence qui existe entre un banc de test d'ECS hors ligne (c'est-à-dire sans présence de faisceau primaire donc sans contraintes de radio-protection) et un banc de production en ligne. Les ECS présentés ont été étudiés pour certains hors ligne et pour d'autres en ligne. Avec le renforcement progressif des conditions de sûreté auxquelles les tests en ligne sont soumis, la préférence a été de plus en plus souvent donnée à des tests de caractérisation sur des bancs situés hors ligne, à l'aide de noyaux stables. Cela peut paraître surprenant pour étudier des systèmes de production d'ions radioactifs mais les études menées ne visaient pas les caractéristiques nucléaires des ions ; elles portaient sur les conséquences des caractéristiques nucléaires et atomiques sur le temps du processus de transformation d'atomes en ions. Les seules caractéristiques nucléaires considérées ont donc été le numéro atomique, la masse et la période radioactive.

Il est cependant difficile d'extraire de mesures effectuées hors ligne les mêmes informations que de celles effectuées en ligne. L'irradiation d'un ECS par un faisceau d'ions peut induire une modification du comportement de l'ensemble de production de différentes façons. La structure microscopique de la cible peut être modifiée, allant dans certains cas et en fonction de la dose déposée par le faisceau primaire jusqu'à une modification de la constitution macroscopique des matériaux (gonflement, vitrification, pulvérisation, évaporation, changement de structure...). Les caractéristiques de diffusion peuvent entre autres être changées. Les matériaux des enceintes ou de la source d'ionisation peuvent être endommagés, comme dans le cas d'aimants permanents. La pulvérisation d'électrons sous l'impact du faisceau primaire dans le volume de l'ECS ou la production d'un dégazage additionnel peuvent aussi modifier le comportement de l'ECS... Ces effets ne peuvent être observés que sous faisceau primaire. Certaines des mesures présentées y ont donc eu recours.

3 Développement de dispositifs dédiés à la production d'ions radioactifs.

3.1 Simple et multi-ionisation

A GANIL/SPIRAL 1, la plupart des ions radioactifs produits par l'ECS devaient être multi-chargés pour pouvoir être post-accélérés par le cyclotron CIME. Pour répondre à l'attente légitime des utilisateurs de faisceaux en termes de statistique expérimentale, l'intensité d'ions radioactifs délivrés devait être maximisée. Ces deux attentes sont parfois difficiles à satisfaire simultanément. Le choix du dispositif de production d'ions radioactifs a donc résulté d'un compromis entre efficacité de transformation des atomes en ions et état de charge en sortie d'ECS.

Pourquoi un compromis ? Une fois le nombre de noyaux radioactifs figé par le couple faisceau primaire-cible, l'efficacité de transformation atomes-ions doit être maximisée pour tirer le meilleur profit de cette production. Il faut donc maximiser chaque étape du processus de transformation, à savoir diffusion en dehors de la cible, effusion jusque dans la source et ionisation. L'ionisation peut être décomposée en deux étapes^{a,23} ; la transformation d'atomes en ions mono-chargés, et la transformation d'ions mono-chargés en ions multi-chargés. Les processus de ces deux étapes d'ionisation sont très différents : lors de la première étape, les atomes effusent sous l'effet de leur énergie thermique, confinés dans un volume limité par des parois matérielles. Une fois les atomes ionisés, ce volume de confinement change : les ions voient leurs déplacements limités par les parois matérielles de la source et aussi par leurs interactions coulombiennes avec l'environnement (autres ions, électron, champ électriques, champ magnétique...). Dans certaines configurations (source ECR par exemple), les ions sont confinés dans un volume immatériel (volume plasma), contenu dans la chambre de la source.

La technique optimale employée pour amener les ions de leur premier état de charge jusqu'à l'état de charge recherché n'est pas toujours la plus efficace pour amener l'atome dans son état de première ionisation. Les sources ECR d'ions multi-chargés en sont la preuve : elles peuvent être très efficaces (~100%) pour amener les ions mono-chargés dans des états de charge plus élevés, quelle que soit leur espèce chimique, alors qu'elles sont faiblement efficaces (de l'ordre de 10%) pour transformer des atomes d'éléments métalliques en ions mono-chargés. Pour optimiser l'efficacité d'ionisation totale, il paraît donc intéressant d'utiliser une source d'ions mono-chargés la plus efficace possible et de l'associer à un « booster de charge » qui amènera les ions dans un état multi-chargé. La

^a Dans certaines sources d'ionisation, les atomes peuvent être directement transformés en ions multi-chargés. Dans le cas d'ionisation par impact électronique rencontré dans les sources d'ionisation usuelles, la section efficace de la voie $0 \rightarrow 1+$ est beaucoup plus importante que les sections efficaces des voies $0 \rightarrow n+$, qui vont décroissante avec l'état de charge. On peut donc considérer en première approche que le processus de multi-ionisation est séquentiel.

faisabilité de cette méthode dite « $1+ \rightarrow N+$ » a été démontrée pour la première fois dans le cadre de la thèse²⁴ de C. Tamburella et a depuis fait l'objet de nombreuses études.

Puisque les atomes radioactifs se propagent par effusion dans l'ECS, il est important que la source d'ions mono-chargés soit installée aussi près que possible de la cible pour limiter le temps de transfert et donc les pertes par décroissance radioactive. Cette proximité implique que les techniques employées pour la réalisation de la source soient compatibles avec l'environnement de fort débit de dose qui règne autour des cibles ISOL si l'on désire que l'ECS possède une durée de vie de l'ordre de quelques semaines^b. A l'heure actuelle, ceci est possible pour les sources d'ions mono-chargés ; de nombreuses sources radio-résistantes existent déjà. Cela devient rapidement plus compliqué pour des sources d'ions multi-chargés^c. La source d'ions mono-chargés est donc installée près de la cible dans la casemate de production, et la source d'ions multi-chargés à l'extérieur de la casemate, derrière un blindage qui limite son exposition aux rayonnements induits dans la cible. Les ions produits dans la casemate sont transportés sous forme de faisceau à l'extérieur de la casemate jusque dans la source d'ions multichargés (appelée « booster de charge » ou « charge breeder ») où ils sont injectés, ralentis, capturés et multi-ionisés. Ils en ressortent sous forme de faisceau d'ions multi-chargés.

Cette solution serait idéale si la séparation des étapes de simple et de multi-ionisation ne s'accompagnait pas d'une perte d'efficacité totale. Par rapport à la multi-ionisation dans une source unique, cette solution est affectée par l'efficacité de transport entre les sources et par l'efficacité de capture des ions mono-chargés dans le plasma du booster de charge. Il est donc important de veiller à optimiser chaque efficacité pour que la recherche d'états de charge élevés, qui ne peuvent être obtenus qu'en utilisant la méthode $1+ \rightarrow N+$, ne se traduise pas simultanément par une perte d'intensité.

Enfin, la source utilisée pour réaliser le « charge breeding » a aussi une influence sur l'intensité disponible dans l'état de charge requis. Plus la source choisie est performante en état de charge et plus le nombre d'états de charge parmi lesquels les ions sont répartis est important. Il en résulte une intensité moindre par état de charge. Le choix du booster ne doit donc être effectué que si les états de charge élevés sont vraiment requis par le post-accélérateur.

^b Cette remarque très générale peut trouver des exceptions, comme celle d'un système ISOL utilisant un faisceau primaire de faible intensité. Le but de la plupart des systèmes ISOL étant de délivrer des faisceaux d'ions radioactifs les plus intenses possibles pour répondre au besoin de statistique des expériences de physique, les intensités des faisceaux primaires sont de plus en plus importantes, et les débits de doses autour des cibles aussi.

^c A l'heure actuelle, des sources ECR et EBIS sont utilisées pour augmenter l'état de charge des ions $1+$. La source EBIS permet d'obtenir des états de charge plus élevés et une pollution réduite. Son principal désavantage est d'accepter une intensité injectée plus faible qu'une source ECR. Ces deux solutions sont complémentaires mais parce qu'elles sont relativement lourdes à mettre en place, les installations ISOL ne disposent généralement que de l'une d'entre elles.

Le premier ECS conçu et installé sur SPIRAL1 est une solution intermédiaire. Lors de sa conception, les éléments visés étaient des gaz rares. Une source ECR permettait de répondre efficacement au besoin de première ionisation et de multi-ionisation des atomes. De plus, les états de charge requis pour l'injection des ions dans le post accélérateur étaient suffisamment faibles (typiquement $^{40}\text{Ar}^{8+}$) pour être produits à l'aide d'une source ECR aux performances « limitées » donc relativement simple : l'usage d'aimants permanents suffisait pour créer le champ magnétique nécessaire, par opposition aux sources « performantes » qui à l'heure actuelle nécessitent de recourir à des bobines pour créer le champ magnétique. Un ECS a donc été conçu en associant une cible de production à une source ECR d'ions multi-chargés à aimants permanents, l'ensemble étant placé dans la casemate. Une évaluation de la résistance aux rayonnements des différents composants de l'ECS a été menée. Malgré le manque de nombreuses données sur la radiorésistance des matériaux, le pari a été pris que l'ECS fonctionnerait pendant une durée de 15 jours et dans les conditions d'irradiation les plus dommageables pour le dispositif^d.

En parallèle de l'exploitation de ce dispositif, différents développements ont été menés pour améliorer le dispositif existant et aussi pour produire de nouveaux faisceaux d'ions radioactifs. Certains ont porté sur les sources d'ions monochargés, d'autres sur des sources d'ions multi-chargés. L'étude d'un système destiné à la production d'ions alcalins a aussi été entreprise avec la volonté de limiter les modifications apportées à l'ECS et de rester au plus près des règles générales d'exploitation de SPIRAL 1 en vigueur. Son principe reposait sur l'association compacte d'une source à ionisation de surface et de la source ECR d'ions multi-chargés NanoganIII utilisée précédemment. Ces exemples, décrits ci-dessous illustrent la multiplicité des solutions qui peuvent être trouvées pour amener des atomes radioactifs à l'état d'ions multi-chargés. Les dispositifs sont présentés à la suite les uns des autres, bien que leurs périodes de développement se soient souvent chevauchées. Leur ordre dans ce mémoire respecte principalement la démarche.

3.2 ECS SPIRAL 1:

À la fin des années 90, le GANIL se lance dans l'aventure de la production des ions radioactifs accélérés en ligne avec le projet SPIRAL 1. Comme source d'ionisation du premier ensemble de production, le GANIL choisit une source ECR de par la pratique historique du GANIL dans ce domaine. Par rapport à l'emploi habituel que le GANIL fait des sources d'ions ECR qui est de produire des faisceaux d'ions stables, cette source doit répondre à de nouvelles contraintes, présentées au chapitre 2 qui limitent ses performances en termes d'état de charge. Une source ECR entièrement à aimants permanents est retenue, de type NanoGan III²⁵ (Figure 5). La source n'est pas très

^d Le retour d'expérience montre que si l'ECS était placé dans les conditions extrêmes d'irradiation autorisées pour le projet, l'espérance de vie de 15 jours requise par le cahier des charges du projet ne serait pas toujours atteinte. Cette espérance de vie est atteinte car l'intensité de faisceau primaire envoyée sur la cible est souvent limitée à environ 1/3 du maximum autorisé.

performante en termes d'état de charge (spectre pointé sur l'état de charge $8+$ de l'Ar), mais elle est compacte et les états de charge obtenus sont compatibles avec les besoins du post-accélérateur CIME (Cyclotron pour Ions de Moyenne Energie). L'efficacité d'ionisation des gaz approche 100% avec une puissance HF de quelques dizaines de watts (dans le cas d'isotopes stables de gaz rares dont le potentiel de première ionisation est de l'ordre d'une quinzaine d'électron volt). Cette source est associée à une cible de carbone destinée à être irradiée par ions lourds.

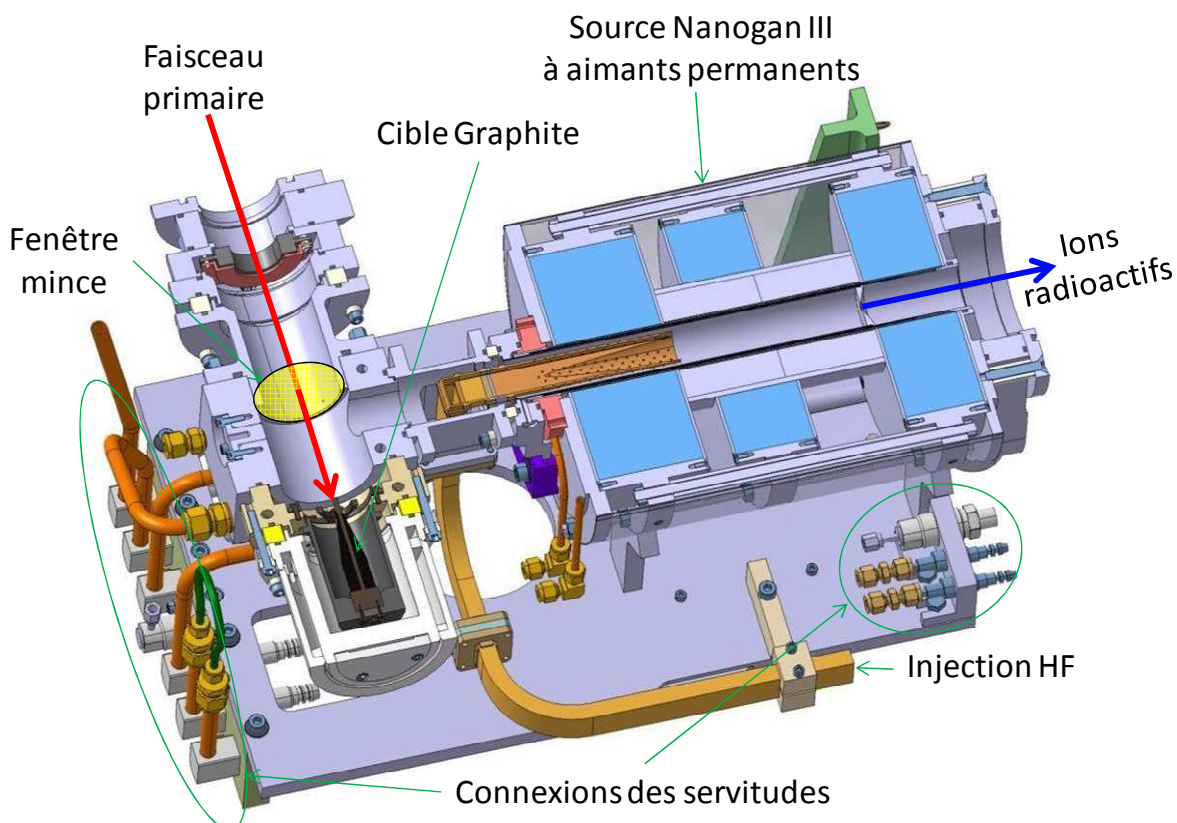


Figure 5 : Ensemble Cible-Source composé de la source Nanogan III et d'une cible en graphite. Version courante en 2012

Les noyaux radioactifs sont majoritairement produits par fragmentation du projectile. Cette méthode donne accès à une palette d'isotopes originale par rapport aux installations ISOL du CERN et de TRIUMF qui, post-accélérés, offre des faisceaux attractifs. La mise en exploitation de SPIRAL 1, le développement et la mise en place des procédures techniques et les obligations réglementaires propres à une Installation Nucléaire de Base ont limité pendant plusieurs années la palette des ions produits. Le type de source rendait aussi difficile l'extension de cette palette aux ions produits à partir d'éléments condensables ; une source ECR est sélective par construction car ses parois, dans la plupart des cas, sont maintenues à température ambiante. Si un atome condensable touche une paroi, il y réside un instant qui peut être suffisant à sa décroissance. Il est donc plus facilement perdu dans une source ECR que ne l'est un atome de gaz rare. De plus, à température ambiante le transport d'atomes de gaz de la cible à la source se fait naturellement par effusion. Dans le cas d'atomes condensables, le chemin d'effusion doit

être maintenu à une température suffisante jusqu'à la chambre de la source pour limiter les pertes par résidence sur les parois. La source ECR choisie permettait difficilement d'accueillir un tube de transfert chaud, son principal inconvénient étant son diamètre d'entrée réduit (38 mm). Dans ce diamètre devaient aussi être installés un chemisage, un écrantage, une électrode de polarisation du plasma, un système d'injection HF, une injection de gaz support et une voie d'effusion, toutes ces parties devant être chauffées et fonctionner simultanément. Enfin, le plasma ECR devait accepter la proximité de ces équipements et être suffisamment dense pour permettre une probabilité d'ionisation importante des atomes au cours de leur vol au travers de la chambre.

Ces considérations ont dissuadé toute tentative concrète. Seules des études de compréhension et d'amélioration du procédé existant ont eu lieu ; elles ont augmenté les performances et la souplesse d'exploitation mais l'offre de faisceaux est restée très proche de la palette d'ions disponible au démarrage de SPIRAL 1 jusqu'en 2012.

3.3 MONO1000:

Mono 1000 : A simple and efficient 2.45 GHz electron cyclotron resonance ion source using a new magnetic structure concept

P. Jardin, C. Barué, C. Canet, M. Dupuis, J.L. Flambard, G. Gaubert, N. Lecesne, P. Leherissier, F. Lemagnen, R. Leroy, J-Y. Pacquet, F. Pellemoine, J-P. Rataud, M.G. Saint-Laurent, A.C.C. Villari. Rev. Sci. Instrum. 73 (2002) 789

Conformément aux règles générales d'exploitation du GANIL, les ECS de SPIRAL1 devaient être remplacés tous les quinze jours. Leur structure magnétique pouvait être recyclée pour être réintégrée dans un autre ECS si les mesures de champ magnétique confirmaient l'absence d'endommagement significatif. La volonté de recycler la structure magnétique venait de son coût de fabrication élevé et du coût de sa mise en déchet. Dès le début d'exploitation de SPIRAL1, l'hypothèse d'une modification ultérieure de l'installation pour y implanter un système $1+ \rightarrow N+$ a été envisagée. La source Nanogan III située dans la casemate serait alors remplacée par une source d'ions mono-chargés. Une des questions auxquelles il fallait répondre était de savoir comment faire une source ECR d'ions mono-chargés (ECR1+) à faible coût et dédiée à l'ionisation des gaz rares ? Et une fois son principe déterminé, serait-il possible de la rendre radio-résistante ? Au démarrage de SPIRAL1, aucun laboratoire n'avait répondu à ces questions, alors que diverses sources existaient déjà depuis plusieurs années pour la simple ionisation d'atomes radioactifs condensables, à ISOLDE entre autres.

Ces questions ont motivé plusieurs développements de source ECR 1+ de taille réduite, la plus aboutie étant la source Monobob II destinée à l'ionisation des gaz radioactifs produits dans le module du projet SPIRAL 2.

La première de ces sources a été la source MONO1000, dont le volume était d'environ 1000 cm³. Elle a été conçue en 1996 par J.Y. Pacquet qui a étudié l'évolution du champ magnétique formé par deux couronnes identiques d'aimants permanents produisant chacune un champ axial. Elles étaient placées sur un même axe et dans le même sens à une distance donnée l'une de l'autre (Figure 6). La simplicité de cette configuration rappelle celle à l'origine des sources ECR²⁶. Elle avait été rapidement abandonnée au profit de structures magnétiques plus élaborées ; leur but était d'obtenir des champs de confinement plus importants pour pouvoir augmenter l'énergie électronique via une augmentation de la fréquence de résonance ECR.

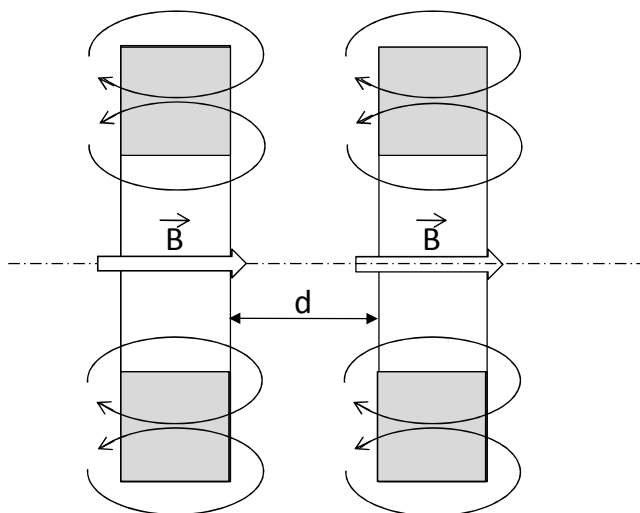


Figure 6 : Configuration magnétique de la source ECR à symétrie de révolution Mono1000

JY. Pacquet a montré qu'en utilisant des couronnes d'aimant initialement destinées à la source Nanogan III, il était possible de créer un champ magnétique remplissant les conditions nécessaires au fonctionnement d'une source ECR à 2.45 GHz^e : au milieu des couronnes d'aimants existait un volume où le champ magnétique était faible et qui était entouré par un champ croissant jusqu'à une valeur supérieure au champ de résonance cyclotronique électronique (Figure 7). La dernière ligne fermée d'équi-module de champ magnétique correspondait à un champ de 2300 Gauss, à comparer au champ résonnant de 875 Gauss à une fréquence de 2.45 GHz.

^e La fréquence de 2.45 GHz est souvent utilisée pour les sources ECR d'ions mono-chargés car elle correspond à la fréquence de nombreux générateurs développés dans un premier temps pour les radio-transmission puis à grande échelle pour le chauffage de matières organiques par excitation de la molécule d'eau. Ces générateurs sont donc très répandus et leur coût relativement faible.

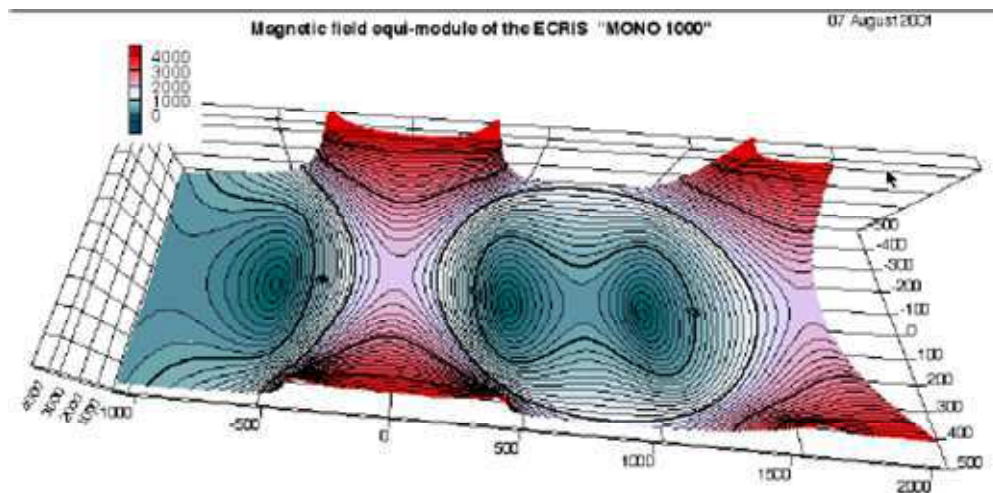


Figure 7 : contours de champ magnetique d'équi-module au centre des couronnes d'aimant de la source Mono 1000. Les lignes grasses correspondent aux milliers de Gauss.

Brevet N°.6.194.836 (Février 2001)

Cette configuration magnétique présente de nombreux avantages : le champ magnétique est simple à calculer et simple à réaliser. Elle présente une symétrie cylindrique autour de l'axe que respectera le faisceau émergeant. Comparé aux faisceaux issus des sources d'ions ECR pourvues d'une structure magnétique destinée au confinement radial (hexapôlares pour les plus répandues), les faisceaux délivrés par cette source promettaient d'être aisément transportables pour peu que leur émittance soit inférieure à l'acceptance de la ligne de faisceau. Enfin, elle présente un espace important entre les couronnes (environ 50 mm), qui permet un accès radial à la chambre plasma, ce dont ne disposent généralement pas les sources d'ions ECR pourvues d'un système de confinement radial. Il devenait possible de placer des équipements dans la chambre plasma ou d'observer l'intérieur de la source par une autre voie que l'ouverture axiale située à l'arrière de la source.

Les mesures de caractérisation ont conduit à une émittance RMS d'un faisceau d' He^+ accéléré à 14 kV de seulement $40 \pi \cdot \text{mm} \cdot \text{mrad}$, ce qui constitue une émittance aisément transportable dans les lignes de faisceaux d'ions basse énergie du GANIL (qui ont une admittance typique de $80 \pi \cdot \text{mm} \cdot \text{mrad}$). De plus, dans les conditions du test, il a été possible d'obtenir un faisceau quasiment parallèle (Figure 8). L'efficacité d'ionisation était de l'ordre de 90% pour les gaz Ne, Ar et Kr et de l'ordre de 45% pour l'He.

Les avantages de cette configuration magnétique et les premiers résultats ont convaincu que ce principe était particulièrement adapté à la production d'ions radioactifs ; la cible pouvait être implantée au plus près du plasma, éventuellement en regard direct de celui-ci, entre les couronnes magnétiques. L'émittance étant relativement faible et le faisceau étant cylindrique, les pertes par transport devraient être faibles. L'efficacité d'ionisation étant importante, elle affecterait peu le rendement de transformation des atomes radioactifs en ions. Et enfin les couronnes d'aimants n'étant pas montées en opposition et à une distance de quelques cm l'une de l'autre, le risque de retournement du

champ sous l'influence du champ de la couronne opposée et des dégâts d'irradiation seraient moindre²⁷.

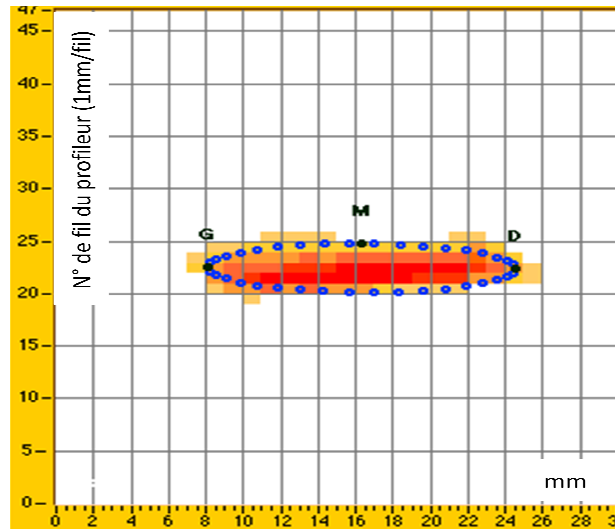


Figure 8 : Figure d'émission en sortie de la source d'ions ECR Mono 1000

Les premiers résultats ont permis de proposer cette source à ISOLDE dans le cadre du contrat de collaboration européenne « Charge breeding »²⁸ au sein de laquelle le GANIL avait comme tâche de réaliser une source d'ions mono-chargés ECR. Le groupe d'ISOLDE a envisagé son implantation sur le banc de production du CERN mais l'étude technique a montré que cette source associée à la cible conduisait à un ECS trop lourd et trop volumineux au regard de la capacité du robot de manutention et de la place disponible sur le banc de production.

3.4 Adaptation d'un magnétron sur une source d'ions ECR.

Adaptation d'un magnétron sur une source d'ions ECR.

Cécile DUMONT, Stage d'IUT Mesures Physiques, printemps 2000. Rapport interne GANIL

Une question inhérente à l'utilisation de sources ECR1+ fonctionnant à 2.45 GHz est de savoir comment amener l'onde jusqu'à la source. Dans le cas de SPIRAL 1, la source nécessite une fréquence de 10 GHz. La section du guide d'onde est de 28.5 mm sur 12.6 mm à 10 GHz. A 2.45 GHz, la section est 10 fois plus importante. Son implantation dans la casemate de SPIRAL 1 aurait été difficilement compatible avec la section des trémies en place. Pourtant, sur une distance telle que celle séparant l'ECS de l'émetteur situé hors casemate, seul un transport par guide d'onde était envisageable compte tenu des pertes importantes dans les câbles coaxiaux. Alimenter une source ECR fonctionnant à 2.45 GHz à l'aide d'un émetteur HF situé à une dizaine de mètres semblait difficile à réaliser simplement.

Une alternative consistait à adapter un magnétron commercial à la source d'ions. Ce type de magnétron est vendu comme pièce de rechange des fours à micro-onde domestiques. En plus de leur faible coût très faible, la cavité de ces magnétrons présente l'avantage de n'être faite que de métal et de céramique, donc probablement suffisamment radio-résistante. Les seules parties soupçonnées de radio-sensibilité étaient les deux couronnes magnétiques.

Le résultat de l'association d'un magnétron à la source ECR MONO1000 a été positif puisqu'il a été possible d'obtenir un faisceau d'ions $1+$. La durée du stage de Cécile Dumont étant limitée, cette dernière est partie et le test a été abandonné. Il nous a cependant appris que cette association directe d'un magnétron à une source ECR est possible. Bien que notre magnétron ait été employé dans des conditions de champ magnétique non optimales car perturbé par le champ magnétique de la source ECR, il a continué de fonctionner. Moyennant un calcul préalable de la configuration magnétique de l'ensemble source-magnétron et d'une mise au point expérimentale, il devrait être possible de réaliser des ECS ECR compacts équipés de leur propre générateur haute fréquence.

3.5 MINIMONO:

La source Mono 1000 n'avait pas atteint un des buts visés, celui du très faible coût. Ses couronnes d'aimants, issues de la source NanoGan III coûtent en 2012 environ 30 k€. Les résultats obtenus ayant été encourageants, une source à coût réduit devait être essayée. La masse des aimants fixant grossièrement le coût, il fallait que la source soit de plus petite taille, ce qui répondrait du même coup aux contraintes du dispositif ISOLDE. Des couronnes d'aimants commerciales ont été trouvées. Une étude magnétique et mécanique (Figure 9) réalisée par G. Gaubert a permis de réaliser une source sur la base de ces aimants. Les principales caractéristiques de la source étaient un volume de chambre de 106 cm³, un poids de 2.7 kg, une ligne d'iso-module de champ magnétique fermée à une valeur de 2000 G, un diamètre de chambre de 40 mm et une distance entre couronnes d'aimants de 20 mm (Figure 10).

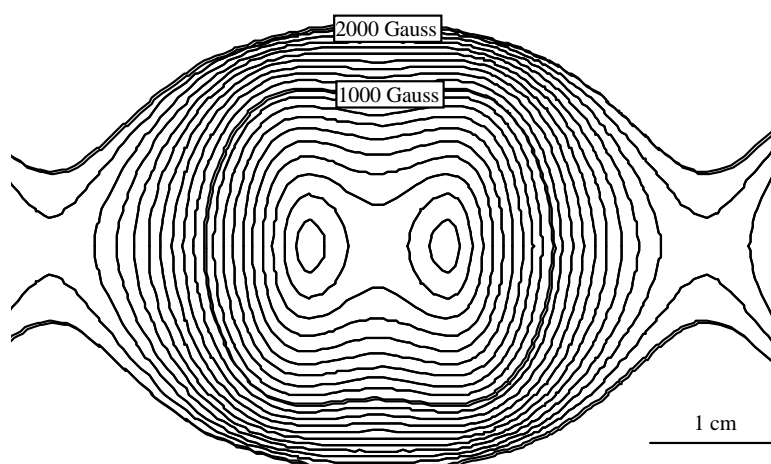


Figure 9 : Forme des lignes d'isomodule de la source Minimono

Restait à résoudre la question de l'injection d'une onde HF dans une cavité de source dont le diamètre de 4 cm était inférieur à la longueur d'onde (12.2 cm). Cette question était fortement discutée car la plupart des sources ECR de l'époque étaient destinées à la production de faisceaux intenses d'ions multi-chargés. Ces sources avaient un diamètre de l'ordre de 6 cm et plus, une longueur de plusieurs dizaines de centimètres et utilisaient des longueurs d'onde faibles (<4 cm). D'autre part la chambre de la source était souvent considérée comme une cavité vide, considération basée sur la nécessité de laisser l'onde HF envahir le volume source pour initier puis alimenter le plasma. Le milieu absorbant que constitue le plasma était difficile à prendre en compte. S'il est évident que l'onde doit pénétrer la chambre pour qu'il y ait un plasma, l'impédance de l'ensemble chambre plus plasma peut être totalement différente de l'impédance de la chambre seule une fois le plasma produit. La diminution de la puissance réfléchie lors de l'apparition du plasma en est la meilleure preuve.

A l'époque de la construction de MINIMONO, peu de moyens performants existaient pour simuler l'injection d'une onde HF dans une source ECR: le plus simple était de tenter de faire fonctionner cette source.

Les résultats obtenus en 2002 avec cette nouvelle source étaient cohérents : l'ignition du plasma était plus difficile à obtenir qu'avec la source MONO 1000 mais une fois le plasma apparu, l'efficacité d'ionisation des gaz Ar et Kr était de plusieurs dizaines de pourcents, et décroissait pour les gaz à plus fort potentiel de première ionisation tels que le Ne (35%) et l'He (22%).

Toujours dans le cadre de la collaboration Charge-Breeding, cette source a été proposée à ISOLDE à la place de la source MONO 1000 pour l'intégrer dans l'ECS existant, sa taille réduite permettant une intégration dans l'ECS moyennant des modifications acceptables. Les premiers tests effectués par F. Wenander²⁹ n'ont pas été entièrement satisfaisants car le rythme d'irradiation de la cible d'ISOLDE par le faisceau primaire induisait des variations de flux de gaz et donc d'efficacité. La suite des développements a été poursuivie par nos collègues d'ISOLDE.

3.6 MINIMONO + cible 2kW SPIRAL 1

Latest results obtained at GANIL with new target-source systems dedicated to radioactive ion production

*P. Jardin, M.G. Saint-Laurent, W. Farabolini, G. Gaubert, J.C. Angélique, J.C. Cornell, M. Dubois, S. Gibouin, N. Lecesne, R. Leroy, L. Maunoury, J.Y. Pacquet, F. Pellemoine, C. Stodel, O. Tuske, D. Verney, A.C.C. Villari, C. Barue, C. Canet, M. Dupuis, F. Durantel, J-L. Rev. Sci. Instrum. **75** (2004) 67-620*

A Ganil, la source Minimono a été associée à la cible de carbone de SPIRAL 1 (Figure 11). La cible était en regard direct du plasma de la source pour tenter d'ioniser les

éléments condensables effusant hors de la cible en direction du plasma. Pour atteindre la cible, le faisceau primaire passait au travers d'une fenêtre en tantale de faible épaisseur puis au travers du plasma. La température de la cible était assurée par la puissance déposée par le faisceau primaire (325 W de ^{78}Kr à 68.5 A.MeV) et la puissance d'un chauffage ohmique. Par rapport à ISOLDE et du point de vue des conditions de production, l'avantage principal était un faisceau primaire continu. Après atteinte de l'équilibre thermique de la cible, le régime plasma était stable moyennant d'optimiser son fonctionnement en jouant sur le flux de gaz support injecté dans la source et sur la puissance HF injectée. L'efficacité d'ionisation de la source était cependant affectée par la présence du faisceau primaire sur la cible : pour l'ion Ar^+ , elle passait de ~65% (sans faisceau) à ~40% (avec faisceau sur cible). La durée du faisceau disponible ne nous a pas laissé la possibilité de faire un diagnostic définitif de l'origine de cette baisse d'efficacité. Les soupçons portaient sur le dégazage additionnel engendré par le faisceau i) sur la cible, même si la température de la cible était peu changée, ii) sur l'émission d'électrons vers le plasma engendrée par la traversée de la feuille d'entrée par le faisceau.

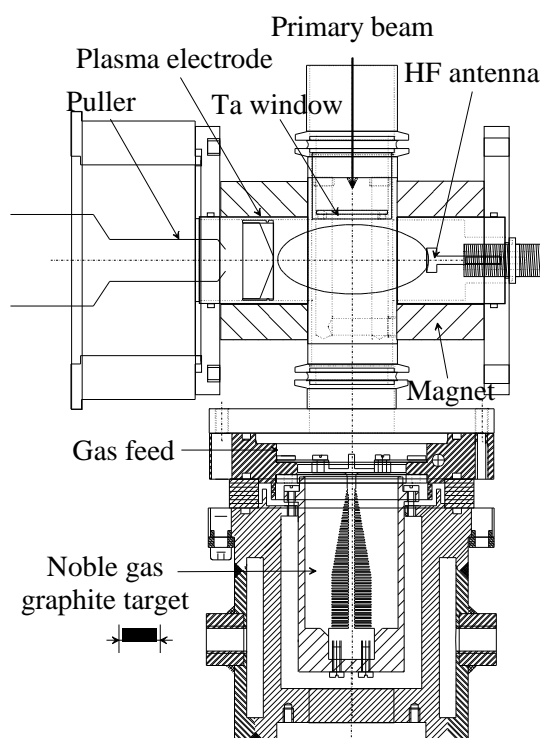


Figure 10 : Dessin en coupe de la source Minimono associée à la cible en carbone de SPIRAL 1

De nombreux isotopes radioactifs ont été produits lors de cette expérience : $^{73,72}\text{Kr}$ comme élément gazeux avec une efficacité totale de l'ordre de 10% et ^{73}Br , ^{72}Br , ^{73}Se , ^{71}Se , ^{70}As avec des efficacités inférieures au pourcent. Parmi ceux produits, l'isotope de plus courte durée de vie a été le ^{72}Kr (17.2 s). Si des atomes radioactifs de durée de vie comparable à la durée du processus d'ionisation (de l'ordre de la dizaine de ms) avaient effusé directement de la cible et avaient été capturés par le plasma de la source, ils seraient

apparus en sortie de la source. Ce résultat montre que la probabilité d'un tel processus dans cette source est trop faible pour être observable.

3.7 MINIMONO+ cible 400 W

Pour limiter le temps de transformation des atomes en ions dans l'ECS, la cible de SPIRAL 1, conçue pour une puissance de faisceau primaire pouvant atteindre 2 kW, a été remplacée par une cible optimisée pour un faisceau de 400 W. Un faisceau identique au faisceau utilisé avec la cible de SPIRAL 1 aurait été idéal pour pouvoir effectuer une comparaison mais aucun faisceau de ^{78}Kr à 68.5 A.MeV n'étant programmé à court terme, un faisceau de ^{36}Ar de 95 A.MeV a été utilisé. La compacité de nouvel ECS devait permettre la production d'isotopes de plus courtes durées de vie.

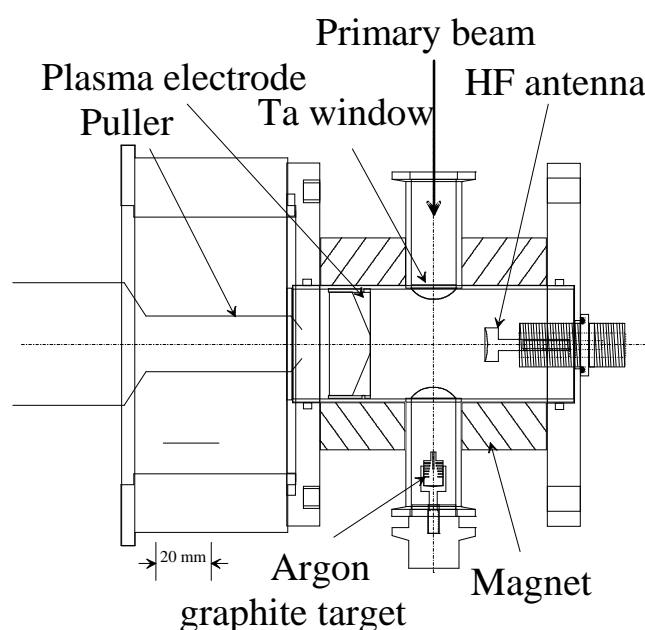


Figure 11 : dessin en coupe de l'association Minimono+cible carbone 400 W

De nouveau, plusieurs éléments radioactifs ont été produits ($^{35,33,32}\text{Ar}$, $^{30,29}\text{P}$, $^{31,30}\text{S}$, $^{34,33,32}\text{Cl}$) dont certains ordinairement difficiles à produire par la méthode ISOL. Parmi les éléments condensables, seuls des isotopes de durée de vie supérieure à ~ 1 s ont été produits. Cet ECS a donc permis d'accéder à des isotopes de plus courtes durées de vie qu'avec l'ECS Minimono+cible 2 kW mais les résultats montraient de nouveau que si le processus de capture directe des atomes effusant vers le plasma avait lieu, il n'était pas observable et donc ne constituait pas une voie importante de transformation des atomes radioactifs en ions.

Une réduction supplémentaire du volume d'effusion de l'ECS semblait difficile. Pour repousser la limitation de la production d'éléments de plus courte durée de vie, il fallait donc s'intéresser au temps caractéristiques des processus impliqués dans la transformation atomes-ions, dont le processus de diffusion des atomes en dehors de la cible de carbone.

3.8 TargISOL

Réalisation d'un dispositif de test de cibles pour la production d'ions radioactifs par la méthode ISOL.

Florent DURANTEL, Ingénieur CDD 1 an, collaboration Européenne TARGISOL. Préparation diplôme Ingénieur CNAM, soutenu le 19 Janvier 2005. Rapport interne GANIL R 04 02. <http://tel.archives-ouvertes.fr/docs/00/04/82/12/PDF/tel-00009664.pdf>

Contribution à la collaboration TargISOL

Cynthia HUET-EQUILBEC, CDD ingénieur, 8 Septembre 2003 au 1^{er} Novembre 2005, Collaboration Européenne TARGISOL, Préparation du Diplôme d'Ingénieur CNAM.

Set-up for systematic measurements of diffusion of atoms from ISOL targets

*P. Jardin, M.G. Saint-Laurent, F. Durantel, C. Eléon, C. Huet-Equilbec, R. Alvès-Condé, J. Cornell, G. Gaubert, J.Y. Pacquet, F. Pelemoine, M. Ozille
Nuc. Instr. and Meth. **B 266** (2008) 4322-4225*

De nombreux travaux ont porté sur les différents aspects de la production d'ions radioactifs par la méthode ISOL depuis les premières expériences de production d'ions radioactifs effectuées. Les résultats disponibles dans la littérature restent encore insuffisamment nombreux pour pouvoir répondre aux besoins en données de base dans tous les cas de figures auxquels les expérimentateurs sont confrontés. Un des objectifs de la collaboration TargISOL^{30f} était la mise en place d'une base de données sur les caractéristiques de diffusion des atomes dans les matériaux. Cette base constitue un outil essentiel d'aide à la conception de dispositifs ISOL. Au regard de la multitude des besoins, spécifiques à chaque dispositif, son contenu présente d'inévitables lacunes. Dans bien des cas, faute de données suffisantes ou adéquates, les concepteurs de systèmes ISOL se retrouvent dans l'obligation de devoir préalablement réaliser des expériences permettant d'extraire les données qui leur manquent.

Le développement de l'ECS de SPIRAL 1 est antérieur à la collaboration TargISOL. Au cours de son développement puis au cours des différentes expériences de production d'ions radioactifs réalisées à GANIL, un ensemble de questions récurrentes apparaissait lorsqu'il s'agissait de comparer les caractéristiques des matériaux extraites d'expériences séparées dans le temps et/ou impliquant des dispositifs différents: quelle était l'influence du dispositif sur le résultat ? Si le dispositif était le même, les conditions d'expérience

^f L'objectif de cette collaboration était l'optimisation du relâchement des atomes radioactifs en dehors des cibles des dispositifs ISOL. Les laboratoires participants étaient CERN-ISOLDE et Paul Scherrer Institut à Villigen, l'université Ludwig Maximilians à Munich, GSI à Darmstadt, GANIL à Caen, CSIC-IEM à Madrid, et le Rutherford Appleton Lab. à Harwell Oxford

étaient-elles identiques ? Et dans certains cas, les matériaux eux-mêmes, vendus sous une appellation commerciale identique mais à des périodes différentes, étaient-ils identiques ?

Le but du dispositif développé au GANIL dans le cadre de la collaboration TargISOL était de s'affranchir des différences provenant des conditions d'expérience. Le même dispositif serait utilisé au cours d'une même expérience pour caractériser plusieurs matériaux cible. Cette démarche n'assurait pas de réduire l'erreur commise sur les valeurs absolues, mais devait au moins permettre d'obtenir des résultats relatifs comparables.

La solution technique développée par F. Durantel consistait à associer un barillet distributeur de cibles à une source de type MONO 1000 (Figure 12). Les cibles étaient introduites à tour de rôle dans un four situé en regard de la chambre de la source. De la même façon que pour les ECS précédents (Cible+source MINIMONO), le faisceau primaire traversait une fenêtre de tantale puis le plasma de la source avant de frapper la cible. La cible était installée dans un container de géométrie identique pour toutes les cibles, lui-même inséré dans un four. Ce four fut préalablement étalonné en température en fonction de sa puissance. Pour pouvoir comparer différents matériaux, ceux-ci devaient avoir la même géométrie de cible. Enfin, pour ne pas perturber la répartition en température de la cible, le courant d'ions primaire devait être très faible, mais néanmoins conduire à un courant d'ions en sortie de l'ECS suffisamment intense pour être observable. Les ions ne devaient donc pas être produits dans la cible à l'aide d'un faisceau primaire intense. Le faisceau primaire était fait d'ions radioactifs, dont l'intensité était préalablement mesurée. Les ions radioactifs étaient directement implantés dans la cible après avoir été produits à l'aide du dispositif SISSI³¹. En mesurant leur intensité juste avant implantation dans la cible, le rapport entre le courant d'ions radioactifs émergeant du dispositif et le courant d'ions implantés donnait directement d'une part l'efficacité de transformation atomes-ions et aussi le temps de réponse dans le cas d'un faisceau primaire haché au court du temps. En outre, cette méthode présentait l'avantage de rendre les mesures indépendantes des sections efficaces de réaction dans la cible.

Les ions radioactifs implantés devaient avoir une durée de vie suffisante pour qu'une part d'entre eux survive à la durée de processus (estimée de l'ordre de la seconde) et une intensité suffisante pour pouvoir être détectés. Le faisceau primaire était donc un faisceau d' ^{35}Ar (1,775 s) d'intensité 10^5 pps.

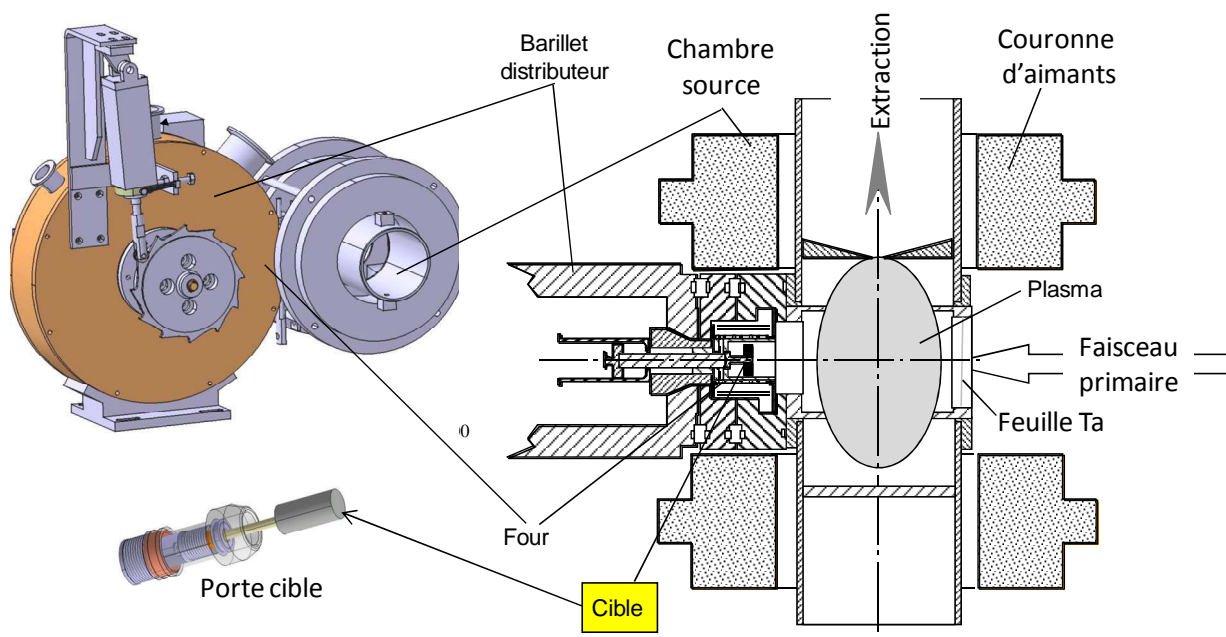


Figure 12 : Système de barillet de cibles associé à la source MONO 1000.

L'analyse des résultats a été faite à l'aide d'un modèle analytique qui décrit le comportement temporel de l'ECS sur la base du coefficient de diffusion dans la cible, de la géométrie de l'ECS, de l'efficacité d'ionisation de la source et de l'isotope implanté (voir paragraphe 4.10).

Le dispositif a fonctionné au cours de deux expériences et a permis de gagner un temps considérable en testant plusieurs cibles en quelques jours, alors que le test d'une seule cible prenait auparavant le même temps d'expérience. Certains points doivent cependant être améliorés comme la fiabilité de certaines parties exposées à la température du four, et le four lui-même qui a chaque fois cassé en fin d'expérience (après environ 3 jours d'expérience). Les résultats obtenus sur les caractéristiques de diffusion sont partiellement présentés au chapitre 4.

Bien que l'utilisation du dispositif n'ait pas été poursuivie à l'issue de la collaboration TARGISOL, la systématique expérimentale qu'il a permis a démontré la possibilité matérielle d'étudier des couples particuliers élément diffusé – matériau diffuseur par l'association de cibles à une source d'ionisation choisie en fonction des éléments d'intérêt. La méthode d'analyse des mesures est présentée au paragraphe 4.10.

3.9 MONOBOB : Conception d'une ECRIS à 2.45 GHz utilisant une structure magnétique créée par des bobines classiques.

MONOBOB : Conception d'une ECRIS à 2.45 GHz utilisant une structure magnétique créée par des bobines classiques.

Le cahier des charges de SPIRAL 2 prévoit de laisser le même ECS sous faisceau primaire pendant une durée de trois mois consécutifs. A 20 cm de la cible de SPIRAL 2, un isolant en résine époxy (couramment utilisée pour l'imprégnation des bobines magnétiques) a une espérance de vie estimée à quelques jours. De même pour les aimants permanents. Seule donc une bobine isolée à l'aide d'un matériau radio-résistant pouvait être utilisée dans la casemate de SPIRAL 2 pour produire le champ magnétique d'une source ECR. Etaient alors exclues d'utilisation dans la casemate la grande majorité des sources d'ions ECR existantes, constituées de bobinages imprégnés d'époxy et d'aimants permanents.

En 2002, le poids de la cible d'UCx envisagée était d'environ 5 kg. Le flux de gaz désorbé estimé via un rapport d'échelle grossier avec la cible de SPIRAL 1 devait être de quelques mAp. La source devait être en mesure d'absorber ce flux. Parmi les sources d'ions mono-chargés existantes au GANIL, seule la source MONO 1000 en serait (peut-être) capable, mais elle comportait des aimants permanents. Une étude magnétique a donc été entreprise pour étudier la possibilité de reproduire le champ magnétique de la source MONO 1000 à l'aide de bobines, tout en restant dans une taille de source similaire et une puissance consommée « raisonnable ». A l'époque, la limite avait été arbitrairement fixée à 10 kW. Les plus expérimentés du Groupe Production d'Ions n'avaient pas de réponse immédiate quant à la solution ; les champs créés par une bobine et par un aimant permanent sont très différents : dans le premier cas, le flux magnétique circule autour des conducteurs alors que dans le second, le flux magnétique traverse l'aimant. Pour s'approcher du champ créé par une couronne d'aimant de MONO 1000 à l'aide de bobines, il a fallu faire appel à deux bobines en opposition, associées à un noyau de fer placé entre les bobines et concentrant le flux magnétique des deux bobines (Figure 13). La partie radiosensible des bobines standard étant la résine d'imprégnation, celle-ci n'a pas été injectée. Seul le ruban en fibre de verre, possédant une radiorésistance élevée et enrubannant les conducteurs des bobines servirait d'isolant. Cette source devait être à terme installée sous vide dans le module de production : un test de dégazage a été réalisé pour valider l'emploi d'un tel procédé sous vide.

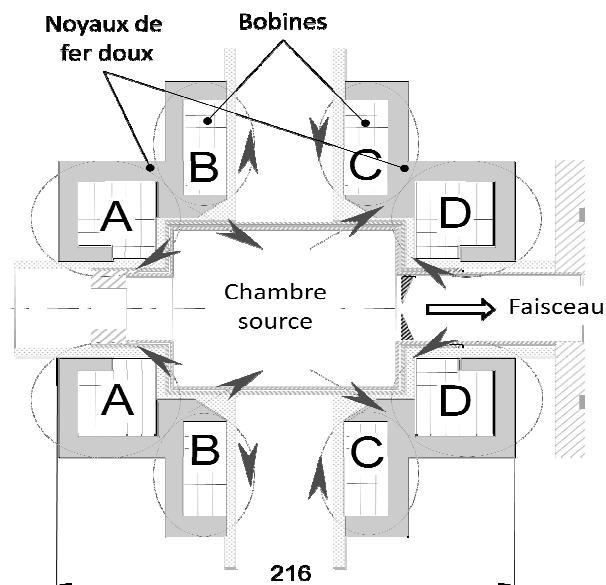


Figure 13 : Coupe de la configuration magnétique de la source MONOBOB. Les flèches représentent l'orientation du flux magnétique.

Le champ magnétique résultant n'était pas parfaitement identique à celui de MONO 1000 mais la dernière ligne d'équi-module fermée correspondait à un champ magnétique de 2000 G (à comparer à 2300 G dans le cas de MONO1000) et le champ au centre passait par zéro dans les deux cas. La distance entre bobines était de 50 mm, ce qui laissait la possibilité d'y installer le tube de transfert en provenance de la cible, et même un guide d'onde HF adapté à une fréquence de 2,45 GHz.

Les tests de caractérisation ont montré que l'efficacité d'ionisation des gaz rares augmentait avec le numéro atomique, de l'hélium à l'argon, jusqu'à plus de 80%. Par extrapolation l'efficacité des atomes de Kr et de Xe devrait être supérieure à 80% (A l'époque de ces mesures, les efficacités d'ionisation du Kr et du Xe n'ont pas été mesurées car le spectromètre de masse du banc utilisé ne permettait pas de faire des mesures d'efficacité précises pour les ions mono-chargés de masse supérieures à celle de l'Ar).

L'onde HF était injectée à l'aide d'une antenne coaxiale, l'utilisation d'un guide d'onde ayant donné de moins bons résultats. C'était désormais cette antenne qui serait utilisée pour les différentes versions de cette source.

Le principe de cette source était démontré. L'étude d'une seconde version a été effectuée pour optimiser la forme de la chambre, en réduisant les volumes perdus et en augmentant la valeur du champ magnétique des dernières lignes fermées. C'est sous une forme proche de la celle présentée Figure 14 que la source MONOBOB sera utilisée par SPIRAL 2.

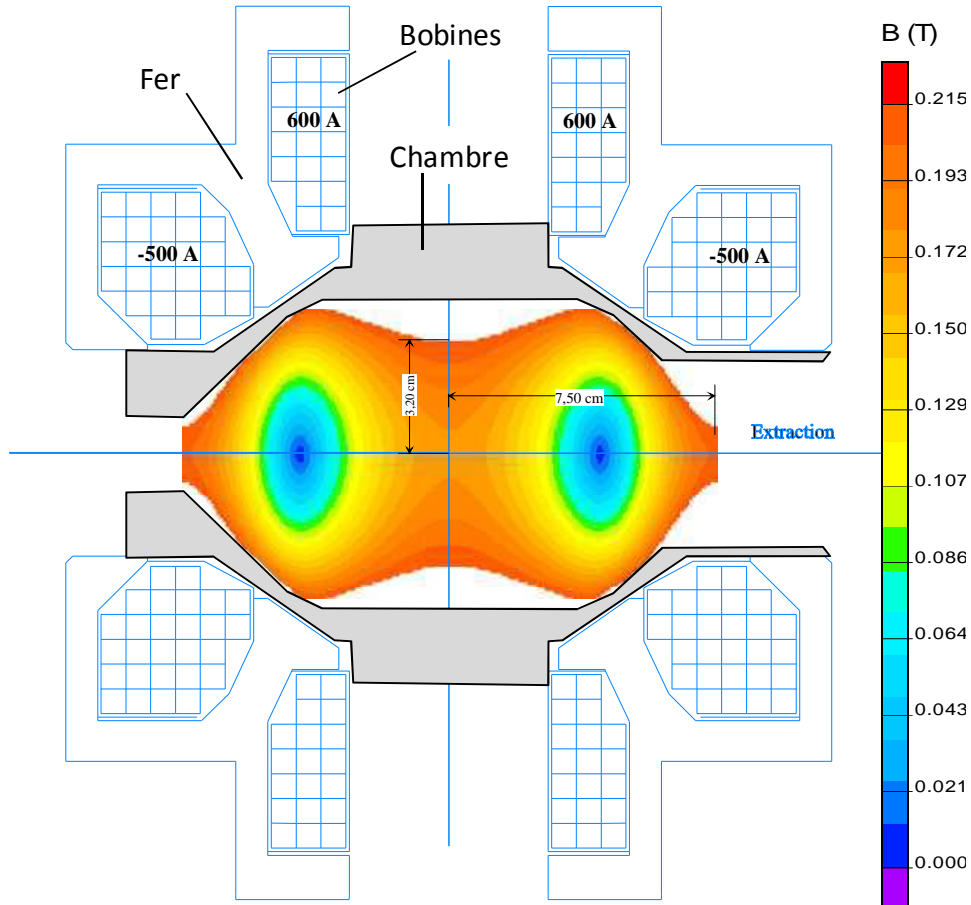


Figure 14 : Coupe de la source MONOBOB version II avec la représentation des lignes d'iso-module et de la chambre optimisée.

3.10 Développement d'une transition HF destinée à la source MonoBob.

Développement d'une transition HF destinée à l'alimentation en ondes HF (2.45 GHz) d'une source d'ionisation à Résonance Cyclotronique Electronique (ECR) pour SPIRAL 2.

Pierre LECACHEUX, Stage de fin d'études, 18 Avril au 24 Juin 2005, IUT Mesures Physiques CAEN
Rapport interne GANIL

L'injection de puissance HF à une fréquence de 2.45 GHz via une antenne coaxiale avait démontré son efficacité. Grâce à un système d'ajustement de la position de l'extrémité de l'antenne dans la chambre de la source, la position optimum avait été déterminée. L'injection par guide d'onde avait été écartée pour deux raisons : l'efficacité d'ionisation obtenue avait été moins bonne qu'avec l'antenne coaxiale ; la deuxième raison est qu'un guide d'onde adapté à une fréquence de 2.45 GHz a une section importante (86.4 mm x 43.2 mm). Cette injection devait être fermée par une fenêtre au plus près du plasma pour ne pas augmenter le volume de la chambre de l'ECS et pour ne pas augmenter son temps de réponse. Si la fenêtre avait été placée près de la chambre, elle aurait été

exposée au plasma et aurait risqué d'être recouverte par un dépôt conducteur (carbone issu de l'évaporation de la cible par exemple) ce qui à terme aurait empêché la transmission de l'onde HF. La placer loin aurait conduit à multiplier le volume de la source par un facteur ~ 2 au minimum. L'emploi du guide d'onde a donc été écarté.

L'utilisation d'une antenne coaxiale conduisait à ajouter un volume mort très inférieur à celui du guide. Cependant, il fallait aussi fermer ce guide d'onde coaxial par un diélectrique, et protéger le diélectrique d'un regard direct avec le plasma. Puisque la source devait fonctionner sous vide, il fallait aussi étudier la possibilité de transporter l'onde HF de l'émetteur, nécessairement situé à l'extérieur de la casemate de production car radio-sensible, jusqu'à la source ECR et maintenir sous vide la partie du guide d'onde intra module. Enfin, les pertes devaient être limitées malgré le nombre important d'étape du transport. Tous ces contraintes auraient aisément pu être satisfaites si les matériels situés dans la casemate n'avaient pas du en plus être radio-résistants.

Pour conserver le mode coaxial de transport adopté pour l'injection dans la source ECR, une étude de guide d'onde coaxial à faible pertes a été réalisée et a démontré sa faisabilité. Les performances théoriques du système coaxial ont été comparées à celle des guides d'onde rectangulaires du commerce. Les performances attendues nous ont encouragé à achever la conception mécanique mais le système n'a pas pu être mis en œuvre suite au départ de l'étudiant en charge de ce sujet. Faute de s'être achevée par une réalisation et un test de caractérisation, cette étude a permis de mettre en lumière l'ensemble des aspects de ce problème spécifiques aux conditions de SPIRAL 2. Cette étude sert maintenant de base au groupe spécialisé qui a repris le sujet.

3.11 Association de la source d'ions MONOBOP à la cible de production en UCx pour SPIRAL 2.

Développement d'un ECS dédié aux faisceaux d'ions gaz nobles

A. Pichard, Thèse de doctorat, 2007-2010, chapitre 3

Status of the ion sources developments for the SPIRAL 2 project at GANIL

P. Leherissier, O. Bajeat, C. Barué, C. Canet, M. Dubois, M. Dupuis, J.L. Flambard, R. Frigot, P. Jardin, C. Leboucher, F. Lemagnen, L. Maunoury, B. Osmond, J.Y. Pacquet, A. Pichard, T. Thuillier, and C. Peaucelle

Rev. Scient. Instrum. 83, 02A915 (2012)

Le dispositif de production d'ions radioactifs du projet SPIRAL 2 doit répondre à un cahier des charges auquel aucun dispositif ISOL n'a à ce jour eu à répondre en termes de durée de fonctionnement (trois mois en continu) dans des conditions de débit de dose jamais affrontées. La conception de chaque partie de l'ECS doit lui conférer une espérance de vie suffisante, tout en lui permettant d'atteindre les performances requises. Les principaux constituants de l'ECS, à savoir la cible de production, le four et la source, ont initialement été développées dans différents laboratoires. Avant de figer la constitution de l'ECS qui sera mis en exploitation, il est nécessaire d'en vérifier le fonctionnement dans le but de connaître ses performances et pour s'assurer que l'association des différentes parties

n'engendre pas de dégradation de leurs performances individuelles (dégradation de l'efficacité d'ionisation de la source exposée au flux d'atomes désorbé par la cible, dégradation de l'injection HF par dépôt sur la fenêtre d'entrée de l'onde par exemple). Le dernier test consiste à faire fonctionner l'ensemble sur une période de 3 mois, en contrôlant régulièrement l'évolution des performances.

Le faisceau primaire utilisé, la cible de production et la source d'ionisation sont choisis en fonction des isotopes à produire et à ioniser. La production des isotopes de Kr et Xe provient de la fission de l'uranium induite par un flux de neutrons de 14 MeV issus de la collision d'un faisceau primaire de deutons de 40 MeV/200kW avec un convertisseur en graphite (Figure 15). L'ECS est placé en aval du convertisseur. Il comprend une cible d'UCx contenue dans un conteneur graphite entouré d'un four. Le volume cible est relié à une source d'ions ECR via un tube de transfert maintenu à température ambiante et muni de chicanes pour limiter la propagation d'éléments condensables jusque dans la source. L'ensemble est placé sous vide dans une enceinte appelée « module de production ».

Le matériau cible est en cours de développement à l'IPN d'Orsay. Il doit permettre de produire le plus grand nombre possible de fragments de fission et simultanément de relâcher ces fragments le plus rapidement possible. La cible de plus grandes dimensions comprend 19 piles cylindriques mises cote à cote, chacune comprenant 80 pastilles d'UCx. Le diamètre total est d'environ 75 mm.

Le four en cours de développement au GANIL doit permettre à terme de maintenir la cible à une température de 2000°C pendant 3 mois. En 2013, la longévité maximum que nous avons obtenue à cette température a été de 54 jours. La prochaine version est en cours d'étude.

La source est de type MONOBOB.

Le module de production est une enceinte à vide. Il permet de remplir un vaste ensemble de fonctions : liaisons des servitudes, maintien sous vide, confinement, protection radiologique...L'étude mécanique de la première version est achevée.

Des tests de transformation d'atomes de gaz rares stables en ions ont été menés avec cet ECS. Le but était de pouvoir séparer la contribution de l'effusion dans la cible de la contribution d'effusion-ionisation dans la source, et d'en déduire l'effet qu'aurait la durée de vie des isotopes radioactifs sur l'efficacité. Les résultats sont présentés au paragraphe 4.13 .

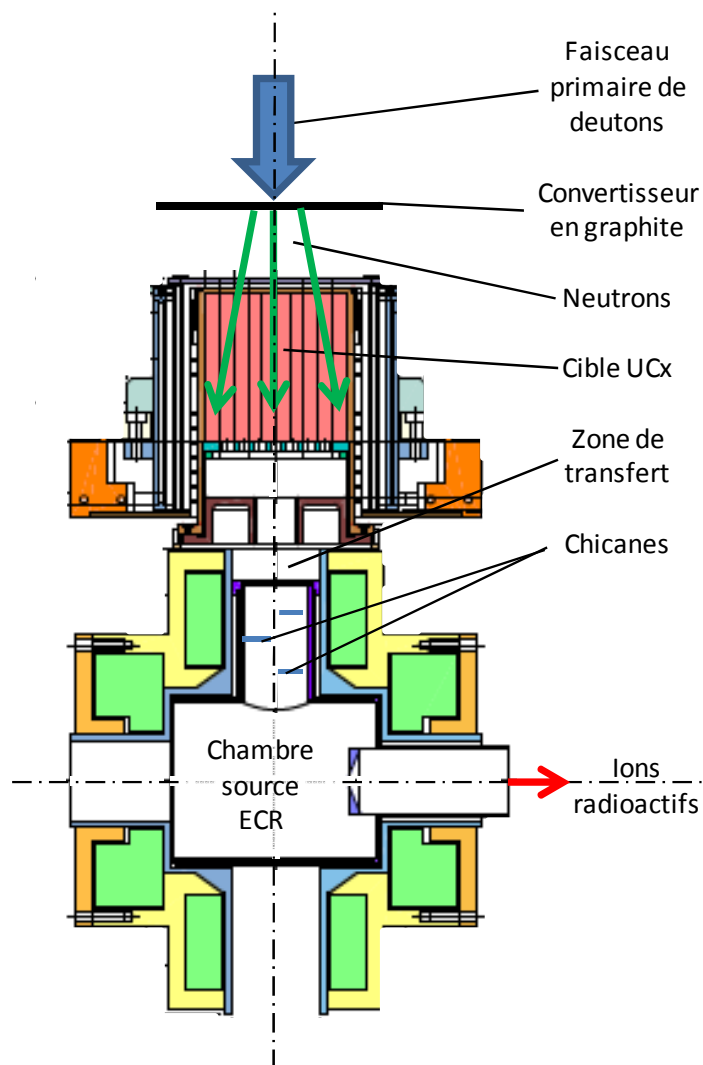


Figure 15 : Schéma de principe de l'ensemble cible-source destiné à la production d'ions radioactifs Kr^+ et Xe^+ dans le cadre de SPIRAL 2.

3.12 Systèmes de production d'ions alcalins mono-chargés radioactifs

Production de faisceaux d'ions alcalins radioactifs mono-chargés à partir de l'ensemble cible source MonoNaKE

Cyrille ELEON, 2004-2007, Thèse de doctorat, chapitre III

Development of a surface ionization source for the production of radioactive alkali ion beams in SPIRAL

C. Eléon, P. Jardin, G. Gaubert, M.G. Saint-Laurent, J. Alcántara-Núñez, R. Alvès-Condé, C. Barué, D. Boilley, J. Cornell, P. Delahaye, M. Dubois, B. Jacquot, P. Leherissier, R. Leroy, G. Lhersonneau, M. Marie-Jeanne, L. Maunoury, J.Y. Pacquet, F. Pellemoine, C. Pierret, J.C. Thomas, A.C.C. Villari. *Nuc. Instr. and Meth. B* **266** (2008) 4362-4367

La méthode de production d'ions alcalins mono-chargés dite « ionisation de surface » utilise un effet thermique³² dont Megh Nad Saha rend compte dès 1920. Un atome en présence d'un matériau porté à haute température aura une probabilité d'être transformé en ion.

Dans le cadre des sources à ionisation de surface, le matériau est une surface solide souvent sous forme de tube et porté à haute température. Dans un ECS, il est relié à la cavité dans laquelle sont produits les isotopes radioactifs. Le matériau constituant le tube doit répondre à deux exigences : avoir une température de fusion élevée de façon à pouvoir le chauffer suffisamment pour que le temps de résidence des atomes soit faible comparé à la durée de vie de l'isotope considéré ; et posséder un travail de sortie électronique aussi élevé que possible par rapport au potentiel de première ionisation de l'atome (en valeur absolue). Si le travail de sortie est supérieur au potentiel de première ionisation, la probabilité d'ionisation à la suite d'un contact est proche de 1 à température ambiante, et diminue lorsque la température augmente. Si le travail de sortie est inférieur au potentiel de première ionisation, la probabilité d'ionisation sera proche de 0 à faible température et augmentera avec la température.

Toujours dans le but de d'étendre la palette d'ions produits avec l'installation SPIRAL 1, une étude³³ de source à ionisation de surface a été entamée à GANIL en 1998. Un des premiers éléments visés était le lithium produit par fragmentation des noyaux d'un faisceau primaire de ^{18}O à 77 A.MeV sur une cible de graphite. D'autres versions ont été réalisées par la suite dans le but d'étendre la production aux ions sodium et potassium.

Le dispositif (Figure 16) comprenait une cible en graphite dont la forme conique était adaptée à la répartition du dépôt de puissance du faisceau primaire et au parcours des ions primaires et des produits de réaction. Sa forme était dérivée de celle employée dans l'ECS de SPIRAL 1. Le dispositif comprenait aussi un conteneur en graphite renfermant la cible, un four résistif autour du conteneur, et une chambre à vide refroidie. L'ioniseur était un tube relié au container de la cible par une de ses extrémités. Son chauffage était assuré par le rayonnement de son environnement immédiat et par contact avec le conteneur de la cible.

Les premières versions d'ECS pour ions alcalins répondaient à plusieurs exigences : le tube ioniseur, traversé par les produits de dégazage et d'évaporation de la cible et de son conteneur, ne devait pas être altéré par un dépôt de carbone. Sa température devait pouvoir atteindre 2000°C sans qu'il se déforme, et enfin son travail de sortie devait être élevé au regard du potentiel de première ionisation des éléments à produire. Le graphite répondait à toutes ces exigences.

Les efficacités³⁴ de production obtenues pour les isotopes ^{27}Na (301 ms) et ^9Li (178 ms) ont été respectivement de 0.9% et de 0.18%, soit un facteur ~10 plus faible que celles des isotopes de plus longue durée de vie tels que ^{25}Na (59 s, 9,3%) et ^8Li (838 ms, 1.2%). Le temps du processus de transformation des atomes produits dans la cible en ions

avait de toute évidence une part de responsabilité dans cette faible efficacité. Plusieurs versions ont été réalisées, sans évolution importante des performances.

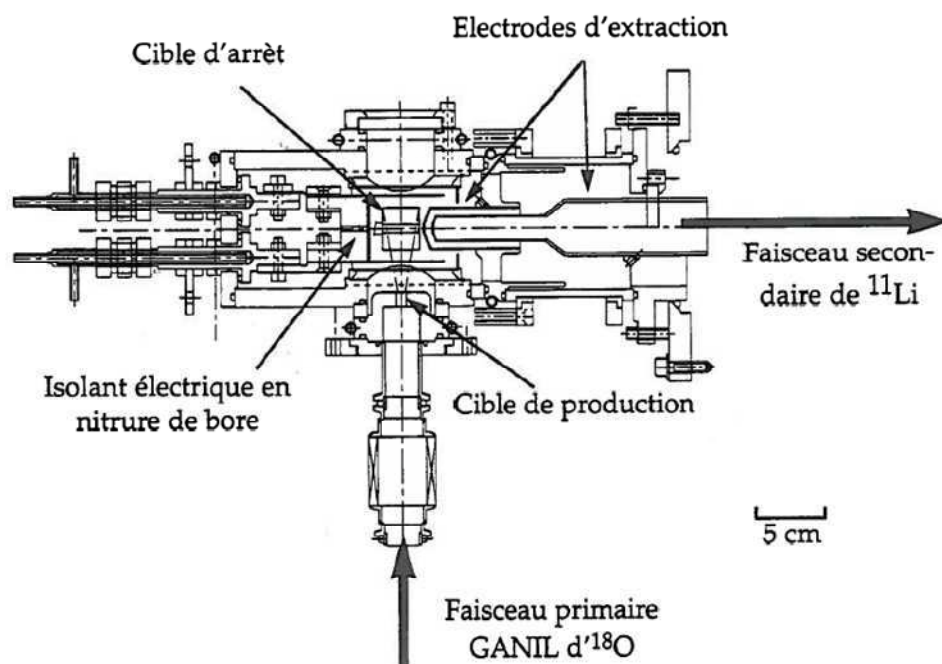


Figure 16 : Première version de l'ECS destiné à la production d'ions alcalins (MonoLithE) à GANIL. Figure extraite de la thèse de L. Maunoury.

Lors de sa thèse, C. Eléon a entrepris d'augmenter cette efficacité. Le dispositif a été modifié de telle sorte que les atomes alcalins, lorsqu'ils effusaient sous forme d'ions dans le conteneur cible ou dans le tube ioniseur, soient entraînés vers la sortie du tube et donc en sortent au bout d'un temps réduit. Pour cela, un champ électrique a été appliqué dans le conteneur et dans le tube ioniseur. Du point de vue électrique, la paroi du conteneur et celle du tube ioniseur constituaient deux résistances en série alimentées par un même générateur de courant. Le courant circulait dans les parois du conteneur et du tube et créait un champ électrique dont l'amplitude dépendait de la résistance. Pour que le champ électrique aide efficacement à l'entraînement des ions, il fallait que l'énergie gagnée par les ions entre deux contacts avec les parois soit aussi grande que possible comparée à l'énergie d'agitation thermique. Cette condition a été satisfaite de façon inégale dans le conteneur et dans le tube ioniseur compte tenu de leurs importantes différences géométriques : le champ électrique dans le conteneur était faible (~ 0.2 V/cm) mais la distance moyenne entre deux contacts avec les parois était grande compte tenu des dimensions du conteneur, permettant à un ion de progresser à plus grand pas. Le champ électrique dans le tube était plus important (~ 2 V/cm max.) mais son diamètre n'était que de 4 mm, limitant à environ 1 cm la distance qu'un ion émis perpendiculairement à la paroi pouvait parcourir vers la sortie entre deux contacts.

En plus du champ électrique, le courant passant au travers de la paroi du tube a permis d'uniformiser la température le long du tube. Le principal avantage était la disparition d'une zone « froide » en sortie de tube, particulièrement néfaste à l'efficacité

d'ionisation car compte tenu du pas moyen parcouru par les ions, de quelques millimètres, ceux-ci avaient toutes les chances d'entrer en contact dans le dernier centimètre du tube, de se neutraliser et d'être perdus sous forme d'atomes en sortant du tube.

Grâce à l'application des champs électriques, un gain important a été obtenu sur les efficacités totales par rapport aux efficacités de la version antérieure: 7 dans le cas du ^9Li (178 ms) et 13 dans le cas du ^{27}Na (301 ms). Les gains obtenus pour les isotopes de plus longue durée de vie ont évidemment été moindres, 4 pour le ^8Li (838 ms) et 4,8 pour le ^{25}Na (59.1 s).

L'application d'un champ électrique dans le conteneur et dans le tube ioniseur a permis d'augmenter significativement les efficacités en ne modifiant que l'effusion ionique dans le volume de l'ECS. Le gain obtenu pourrait encore être renforcé :

- En augmentant le champ par augmentation de la résistance des parois (cependant limité par la résistance mécanique de la paroi si son épaisseur diminue)
- En modifiant le matériau du conteneur et du tube (tout en étant compatibles avec les conditions d'utilisation)
- En réduisant le volume du conteneur (pour limiter le temps d'effusion)
- En polarisant la cible par rapport à l'entrée du tube ioniseur

3.13 Méthode directe d'amplification de charge : NanoNaKE

Direct 1+ to n+ method for production of radioactive alkaline ions.

C. Eleon, O. Tuske, G. Gaubert, J.Y. Pacquet, M. Dubois, M.G. Saint Laurent, P. Jardin, J. Cornell, R. Leroy. Rev. Sci. Instr. 77 (2006) 03A704

Development of a 1+/N+ setup for the production of multicharged radioactive alkali ions in SPIRAL

C. Eléon, G. Gaubert, P. Jardin, M.G. Saint Laurent, J. Alcantara, R. Alvès Condé, C. Barué, D. Boilley, and J.C. Cornell. Rev. Scient. Instrum. 79 (2008) 02A904

Production d'ions alcalins radioactifs mono-chargés : METHODE 1+/N+ DIRECTE

C. Eléon, Thèse de Doctorat, 2004-2007, chapitre IV

Etude de faisceauologie dans le système NanoNaKE

Juan Alcantara-Nunez, 2007-2008, Rapport interne GANIL

Direct 1+→N+ conversion of stable alkali ions using an electron cyclotron resonance ion source

A. Méry, P. Jardin, J. Alcantara, M. G. Saint-Laurent, O. Bajeat, P. Delahaye, M. Dubois, H. Frånberg, P. Lecomte, P. Leherissier, L. Maunoury, A. Pichard, J. Y. Pacquet, J. C. Thomas. Rev. Scient. Instrum. 81 (2010) 02A904

Pour pouvoir être post-accélérés par le cyclotron CIME, les ions alcalins doivent auparavant être multi-chargés. Pour atteindre ce but, l'association d'une source d'ions

alcalins mono-chargés à la source NanoGAN III a été débutée en 2003. Le principe était proche de celui de la méthode $1+/N+$ avec séparateur de masse : les atomes radioactifs produits dans la cible diffusaient puis effusaient jusque dans le tube ioniseur, à la sortie duquel ils étaient accélérés pour former un faisceau d'ions mono-chargés. Le faisceau était focalisé pour être injecté dans la source d'ions $N+$ où ils étaient décélérés pour être capturés par le plasma, multi-ionisés et ré-accelérés en sortie de source $N+$. Un résultat démontrant le principe de conversion $1+/N+$ direct a été obtenu lors de la thèse de C. Eléon en utilisant des isotopes radioactifs de potassium pour la conversion $^{47}\text{K}^{+} \rightarrow ^{5+}$. L'utilisation d'isotopes radioactifs présentait l'avantage d'un très bas seuil de détection du nombre de particules produites mais la mise au point du dispositif à l'aide d'un faisceau primaire d'ions pour produire des isotopes radioactifs nécessitait des ressources trop importantes pour être poursuivie au-delà de quelques jours : elle a donc été suspendue. La conversion à l'aide d'ions stables, quant à elle, n'avait jamais été observée avec un tel dispositif.

En 2006, les gains en efficacité obtenus avec la source d'ions alcalins mono-chargés (MonoNaKE) nous ont encouragés à reprendre les tests en utilisant des ions stables, moyennant une adaptation du dispositif (Figure 17). L'ensemble devait pouvoir remplacer dans la casemate l'ECS destiné à la production de gaz sans modifier les principales interfaces avec la casemate de production. Le système résultait de l'association de trois dispositifs qui n'avaient jamais fonctionné ensemble au préalable : la source MonoNaKE, la courte ligne de transport du faisceau $1+$ et la source d'ions multi-chargés NanoGAN III. Les associer sans les tester deux à deux au préalable et en espérant que l'ensemble fonctionnerait immédiatement était optimiste compte tenu des risques de perturbation que chaque partie pouvait induire sur sa voisine. Puisque la source MonoNaKE avait donné des résultats satisfaisants, et que la source NanoGAN produisait régulièrement des ions multi-chargés, les interrogations portaient principalement sur le transport des ions mono-chargés, sur leur injection et sur leur capture dans la source NanoGAN. La partie Cible-source MonoNaKE a donc été remplacée par une cathode émettrice d'ions alcalins mono-chargés stables et des tests hors ligne ont été menés.

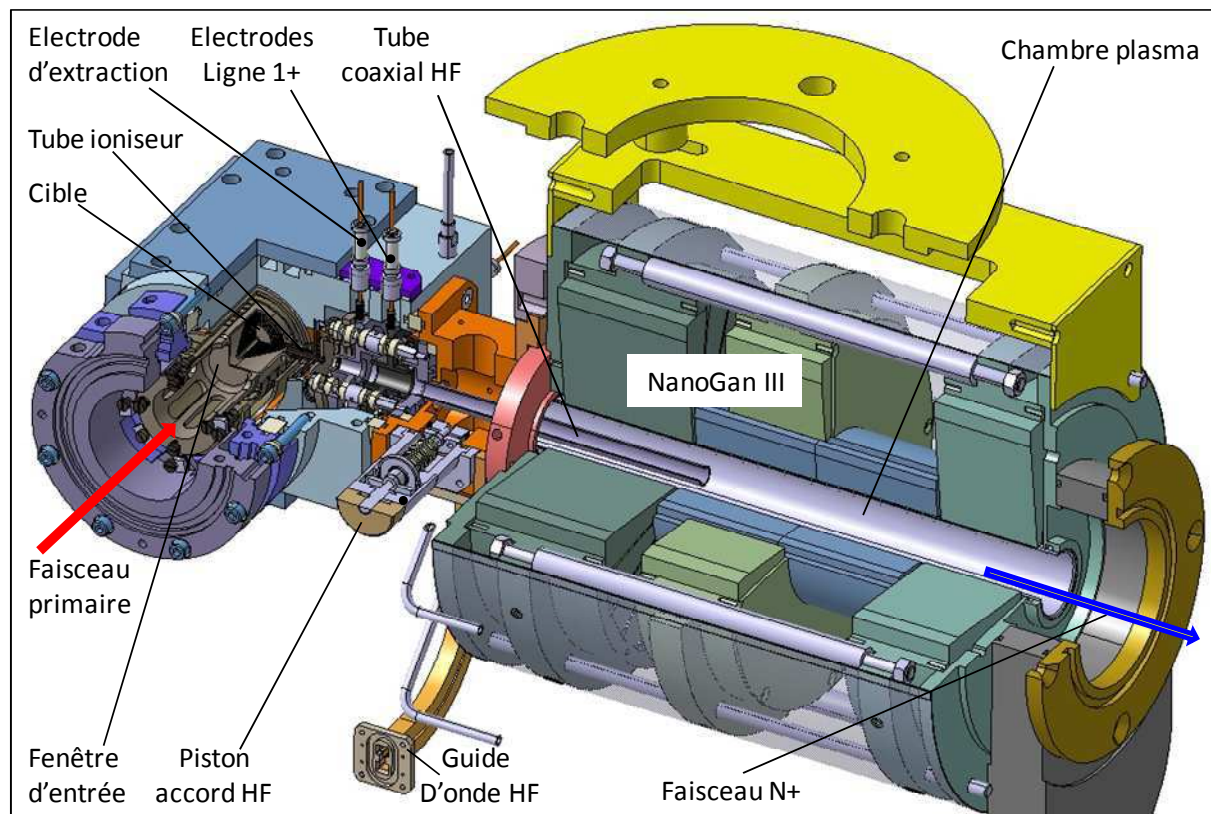


Figure 17 : Dessin du système NanoNaKE (version 3).

Ces tests ont permis d'effectuer de nombreuses observations dont les quatre suivantes qui sont particulièrement importantes pour le fonctionnement de ce dispositif:

- La pression dans la ligne 1+ devait être inférieure à 10^{-5} mbar (Figure 18), ce qui ne pouvait pas être obtenu avec les systèmes antérieurs car ils ne disposaient pas de voie de pompage entre source 1+ et source N+.

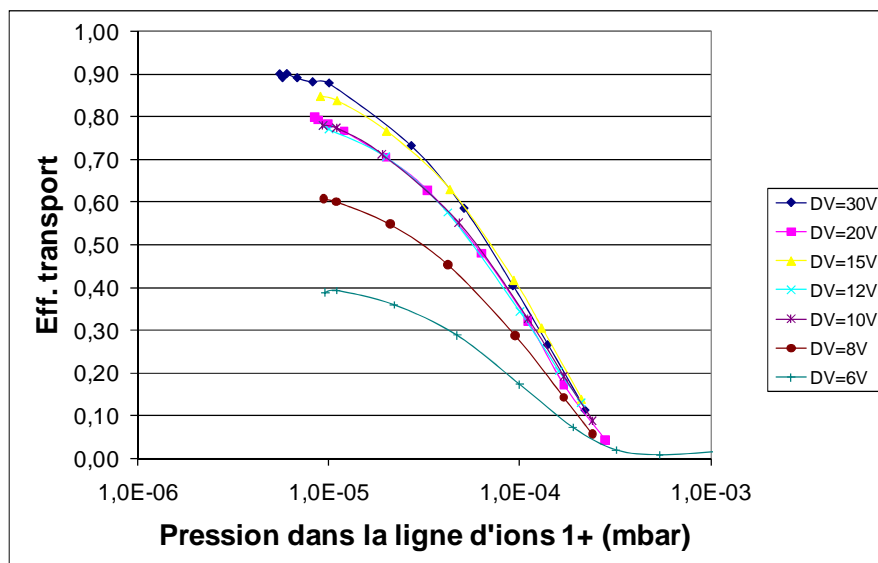


Figure 18 : Evolution du transport en fonction de la pression dans la ligne de faisceau d'ions mono-chargés (Faisceau d'ions K+ transportés de la source 1+ à la chambre de la source ECR).

- La tension de transport devait être plus élevée que celle employée (> 2 kV, voir Figure 19), mais la proximité des électrodes ainsi que la pression relativement élevée entraînaient l'apparition de décharges continues entre électrodes, décharges qui interagissaient avec le faisceau d'ions $1+$, perturbaient la polarisation des électrodes et dégradaient le transport du faisceau.

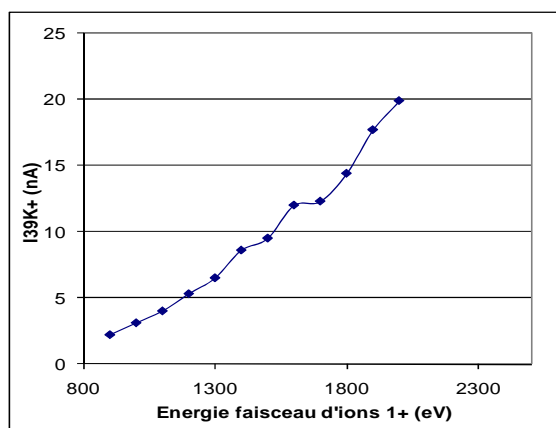


Figure 19 : Evolution du courant d'ions K^+ transportés dans la ligne jusqu'à la source en fonction de l'énergie de transport

- Le régime plasma de la source NanoGAN III devait être très différent de celui habituellement recherché pour l'ionisation des gaz : le courant débité devait être proche de $180 \mu\text{A}$ (Figure 20), plutôt que $\sim 600 \mu\text{A}$. L'optimum d'efficacité à cette valeur de courant a été attribué au compromis entre deux effets opposés : l'interaction du faisceau d'ions mono-chargés avec le faisceau émis vers l'arrière par la source ECR d'une part, et la probabilité de capture des ions mono-chargés par le plasma d'autre part. Si le courant débité par la source ECR diminue, l'interaction avec le faisceau d'ions mono-chargés diminue mais simultanément, la densité du plasma diminue et donc la probabilité de capture diminue. Le maximum observé correspond à un compromis entre ces deux effets. Pour limiter cette interaction, il est possible d'augmenter l'énergie de transport des ions mono-chargés mais dans le cas présent, cette tension correspondait au maximum admissible avant apparition de décharge.

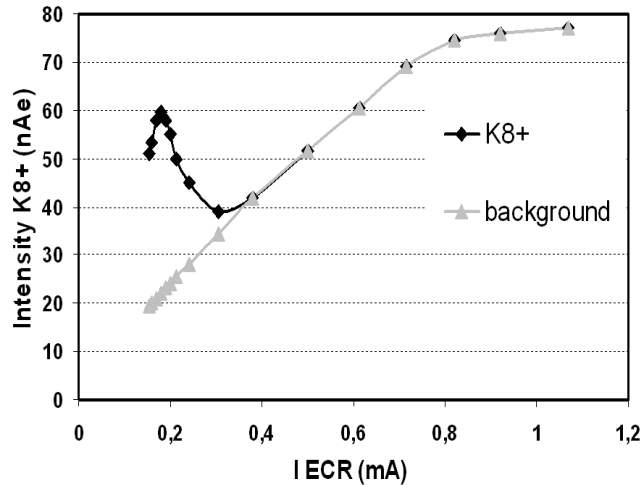


Figure 20 : Influence du courant arrière émis par la source ECR sur l'intensité de K^{8+} mesurée sur la cage de Faraday derrière le spectromètre de SIRa. Tension transport = -2500 V, $\Delta V = 11$ V.

- La tension ΔV à appliquer entre sources $1+$ et $N+$ pour obtenir l'optimum de conversion $1+/N+$ a été proche de 11 V ± 1 V (Figure 21) pour les ions K^+ , Rb^+ et Cs^+ .

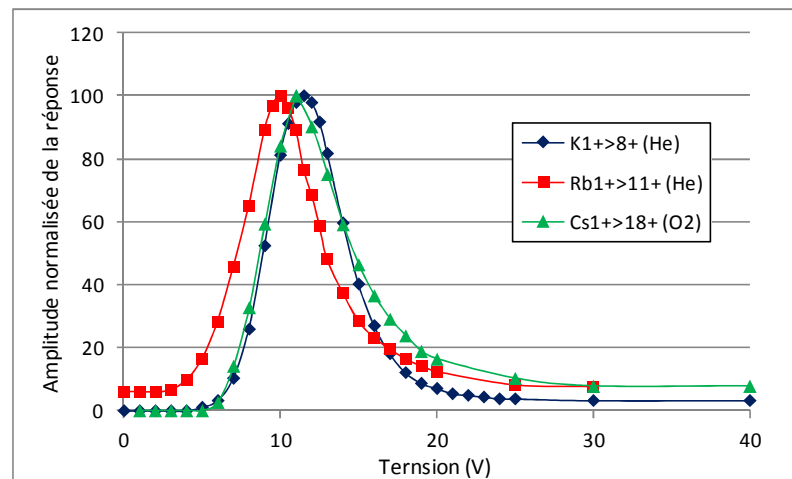


Figure 21. Différence de tension ΔV entre sources $1+$ et $N+$ pour obtenir les optimums des conversions $^{39}K^{+} \rightarrow ^{8+}$, $^{85}Rb^{+} \rightarrow ^{11+}$ and $^{133}Cs^{+} \rightarrow ^{18+}$. Le gaz support utilisé pour la source ECR est indiqué entre parenthèse dans chaque cas.

Une fois testé avec des éléments stables, l'ensemble ligne $1+$ et source ECR a été associé à l'ensemble cible-source d'ions mono-chargés MonoNaKE. Des faisceaux de ^{48}Ca (60,3 A.MeV) et de ^{36}S (50 A.MeV) ont été utilisés pour produire en ligne des atomes radioactifs de ^{47}K , $^{21,25,26}Na$ et ^{28}Al et mesurer leurs efficacités de transformation en ions. Par rapport au dispositif antérieur, ce dispositif a permis :

- d'améliorer le taux de production du $^{47}K^{5+}$ d'un facteur 1,5 à 2 pour atteindre un taux de 6×10^4 pps. Ce taux reste cependant environ 5 fois inférieur au taux calculé à partir du taux obtenu avec la source MonoNaKE seule multiplié par l'efficacité de

transport et de conversion en ions N^+ obtenus avec l'ensemble ligne 1^+ associée à la source ECR.

- d'observer les conversions $1^+/N^+$ pour les ions $^{21,25,26}\text{Na}^{3+,4+}$. Les taux obtenus révèlent de nouveau qu'il y a un facteur 4 à 10 de moins que les valeurs attendues.
- D'observer la conversion $^{28}\text{Al}^{1+} \rightarrow 3^+$ avec une efficacité de 3.1×10^{-6} .

Ces résultats pourraient certainement être améliorés par une optimisation du dispositif ainsi que des réglages qui ont été faits sur une plage de temps réduite, conséquence du temps qu'il a fallu consacrer à la résolution de problèmes techniques en grande partie liés à la compacité d'un système où règnent simultanément des hautes tensions, de fortes températures, un champ magnétique et un faisceau d'ions.

Certains comportements du dispositif n'ont pas trouvé d'explication comme l'indépendance de l'efficacité de conversion des ions sodium avec la tension ΔV entre sources 1^+ et N^+ , alors que cette dépendance était très visible lors des tests effectués avec des atomes stables. Par ailleurs, aucune dépendance entre les taux de production et la tension/puissance appliquée sur l'ioniseur n'a pu être observée. Cette indépendance reste inexpliquée et va à l'encontre des observations faites en 2006 avec le système cible-source 1^+ MonoNaKE seul.

Le développement de cette technique a été provisoirement interrompu pour que les ressources soient dédiées à des sujets plus en phase avec les besoins de la communauté des utilisateurs. L'investissement fait dans cette étude a cependant été très bénéfique car il a permis d'identifier les effets déterminants pour le fonctionnement de l'ensemble du dispositif, ce qui facilitera grandement la reprise et la mise au point de ce développement si elles doivent avoir lieu.

3.14 Optimisation des performances d'une source à ionisation de surface : dispositif SISTHE.

Développement d'une source test à ionisation de surface dans le cadre de SPIRAL 2 : SISTHE

C. Eléon, thèse de doctorat 2004-2007, chapitre V

Problématique d'une source à ionisation de surface dédiée à la production de faisceaux d'ions radioactifs.

A. PICHARD, Stage de 3^{ème} année, Avril à Août 2007, ENSPG Grenoble, Rapport interne GANIL

Method for efficiency and time response measurement on diverse target ion sources with stable alkali

A. Pichard, J.A. Alcántara-Núñez, R. Alvès-Condé, M. Dubois, P. Jardin, P. Lecomte, J.Y. Pacquet, M.G. Saint-Laurent. JACoW Proceedings EPAC 08 MOPC 154 (2008) 436

Development of a surface ionization source for the SPIRAL 2 project

*A. Pichard, P. Jardin, M.-G. Saint-Laurent, R. Frigot, O. Bajeat, P. Delahaye, M. Dubois, H. Fränberg, P. Lecomte, P. Leherissier, R. Leroy, N. Lecesne, L. Maunoury, A. Méry, J.Y. Pacquet and the GANISOL group. Rev. Scient. Instrum. **81** (2010) 02A908*

La géométrie du tube ioniseur des premiers ECS MonoNaKE avait été principalement inspiré par ce qui était fait dans d'autres laboratoires et le choix du matériau répondait aux critères de travail de sortie élevé, de tenue à haute température et de non réactivité chimique aux vapeurs de carbone. Les progrès effectués étaient encourageants, et les résultats pouvaient encore probablement être optimisés via une meilleure compréhension de la dépendance de l'efficacité d'ionisation en fonction des paramètres de la source. De plus, le projet SPIRAL 2 demandait à ce que les isotopes radioactifs alcalins Rb et Cs et alcalino-terreux Sr et Ba, majoritairement produits par fission de l'uranium, fassent partie des faisceaux d'ions proposés. Pour optimiser la solution technique, un dispositif d'étude appelé SISTHE (Source à Ionisation de Surface de Test Haute Efficacité) a donc été conçu. Le but était circonscrit : concevoir un ioniseur le plus efficace possible et qui pourrait fonctionner pendant trois mois. Les paramètres techniques étaient les suivants : géométrie, matériau, champ électrique, température. Le dispositif SISTHE devait être conçu de façon à ce que chacun de ces paramètres puisse être aisément modifié. Les grandeurs à mesurer pour juger des performances de l'ioniseur étaient l'efficacité d'ionisation via le rapport entre le courant d'ions émergeant et le flux d'atomes entrant, et le temps de transformation des atomes en ions qui permettrait ensuite d'extrapoler aux éléments radioactifs les résultats des mesures effectués à l'aide des mêmes éléments stables. Le principe de mesure devait être aussi simple que possible pour minimiser les erreurs entre valeurs mesurées et détermination des valeurs de paramètres.

Pour permettre de déterminer avec une précision de l'ordre de quelques pourcents la quantité d'atomes présents à l'entrée du tube ioniseur, une cavité a été raccordée à un tube ioniseur d'un côté et à canon à ions alcalins de l'autre. La surface relative des orifices de la cavité permettrait de savoir quelle quantité d'ions injectés par le canon atteindrait l'entrée du tube ioniseur. Ensuite, en faisant le rapport du courant émergeant du ioniseur et du courant présent en entrée, il serait possible de connaître l'efficacité d'ionisation du tube.

Le canon permet d'injecter dans la cavité un courant d'ions de faible énergie (1keV) dont l'intensité peut être aisément mesurée avec une bonne précision. Les ions sont arrêtés sur une feuille d'où ils repartent soit sous forme d'atomes, soit sous forme d'ions, selon leur potentiel d'ionisation. Les parois de la cavité étant équipotentielles, on suppose que cette différence n'influence pas l'effusion des particules. Elles effusent donc dans la cavité jusqu'à atteindre soit l'orifice de sortie (orifice d'injection du faisceau d'ions), soit l'orifice

du ioniseur. La quantité relative d'atomes atteignant chaque orifice peut être aisément connue à l'aide d'un simple programme de calcul d'effusion (qui ne fait dans ce cas que confirmer la justesse du principe du rapport des surfaces orifice/cavité). S'ils sortent côté injection, les atomes sont perdus. S'ils atteignent l'entrée du tube ioniseur, leurs chances de sortir à l'autre extrémité du tube en étant ionisés dépendent des caractéristiques du tube, à savoir géométrie, matériau, température et champ électrique appliqué dans le tube.

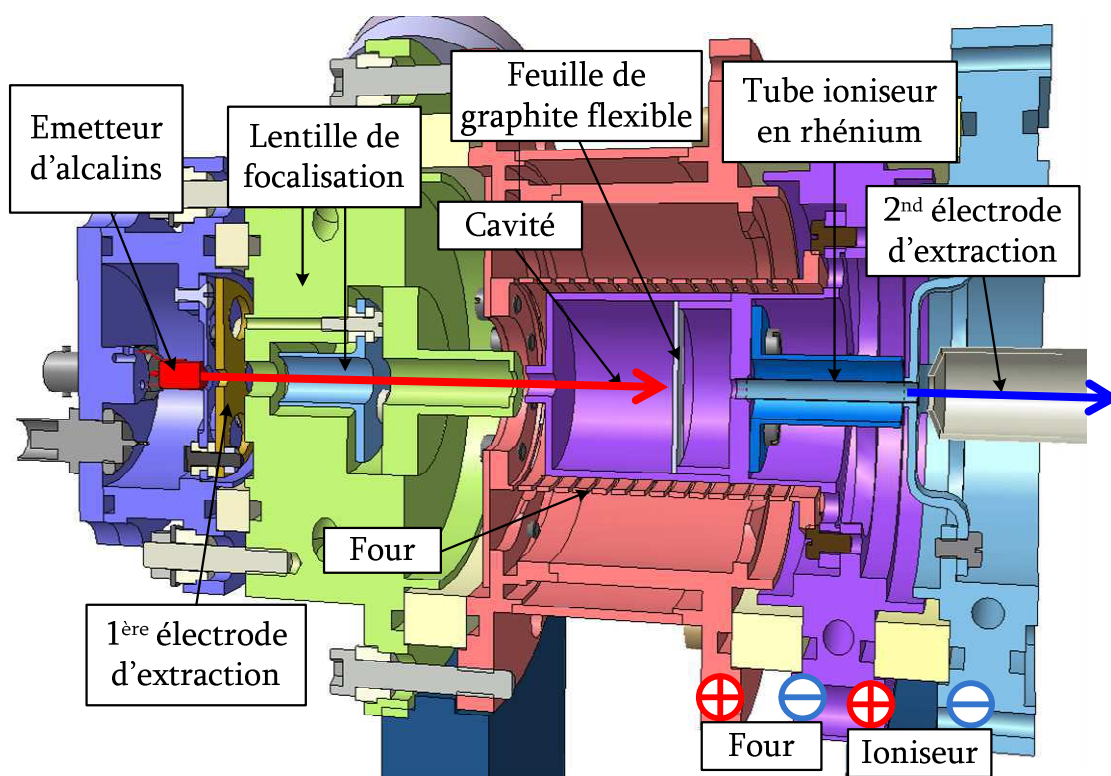


Figure 22 : Schéma de principe du dispositif SISTHE couplé au canon à ions alcalins. A la sortie du tube ioniseur, les ions sont accélérés, traversent un spectromètre de masse et sont collectés sur une coupe de Faraday.

Les paramètres techniques retenus pour le tube ont été

- Une température de 2000°C. Elle résulte d'un compromis entre espérance de vie du tube et efficacité d'ionisation par contact.
- 3 cm de long et 4 mm de diamètre interne. Un calcul d'effusion nous avait montré que cette géométrie assurerait que la grande majorité des atomes toucheraient la paroi du tube avant d'en sortir, et donc que l'état de la majorité d'entre eux dépendrait des caractéristiques du tube.
- Tube en rhénium ou en carbone, tout deux étant réfractaires, présentant un travail de sortie important et n'étant pas altérés par le dépôt de carbone susceptibles de provenir d'une cible en graphite (cas des cibles de SPIRAL 1) ou en carbure d'uranium (cas d'une cible de SPIRAL 2). Ces deux matériaux ont été testés.

- Epaisseur de tube suffisamment faible pour que le champ électrique créé par le courant de chauffage du tube crée un champ électrique de l'ordre du volt par cm à l'intérieur du tube (champ suffisamment important au regard de l'énergie d'agitation thermique des atomes à 2000°C). Un code de calcul d'effusion utilisant la méthode de Monté-Carlo a été développé spécifiquement pour rendre compte dans le cas de notre géométrie cavité+tube ioniseur de l'efficacité d'ionisation en fonction de la probabilité d'ionisation par contact. Le résultat, présenté Figure 23, met en évidence le gain apporté par l'application d'un champ électrique dans le tube. Dans notre cavité, la probabilité qu'un atome de la cavité atteigne l'orifice du tube ioniseur est de 33%. Une fois l'orifice atteint, son écoulement au travers du tube ioniseur est réduit par la faible conductance du tube. Une part importante des atomes qui atteignent l'entrée du tube repartira alors vers la cavité. Même dans le cas d'une probabilité d'ionisation par contact de 100%, qui lui assure de sortir sous forme d'ion, la probabilité pour que cet ion sorte du bon côté du tube est réduite à 10%. Si le champ appliqué dans le tube est de 1V/cm, cette probabilité passe à 90%. L'application d'un champ électrique est donc incontournable au regard de la recherche d'efficacité, car il apporte un gain qu'il est facile d'obtenir au regard de celui dû à une augmentation de température, qui de plus limite la durée de vie du matériau chauffé. La contrepartie est une faible épaisseur du tube ioniseur, ce qui peut aussi aller à l'encontre de son espérance de vie. Les épaisseurs choisies pour le carbone et le rhénium ont donc résulté d'un compromis entre champ électrique, température et durée de vie, et ont été choisies égales à 1 mm (graphite) et 0.125 mm (rhénium).

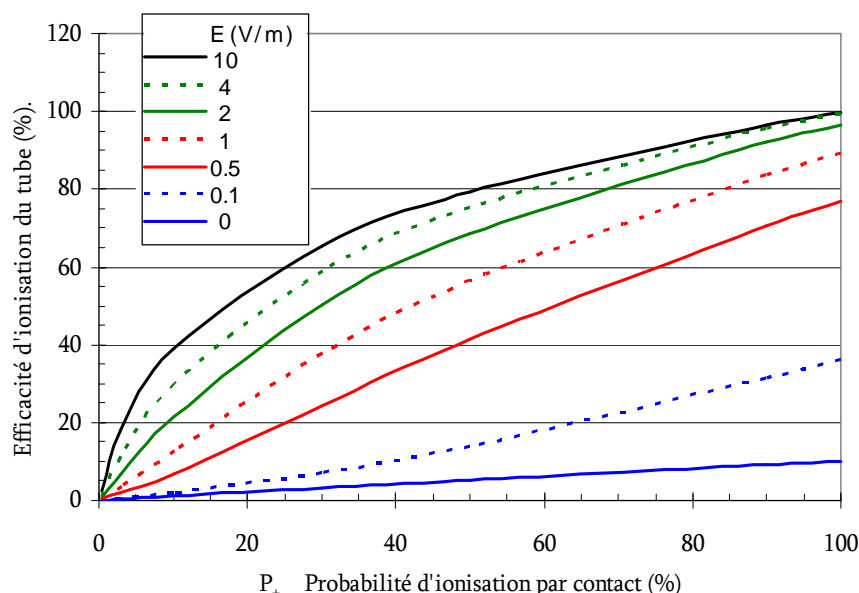


Figure 23 : Evolution de l'efficacité d'ionisation du tube en fonction de la probabilité d'ionisation par contact pour différentes valeurs de champ électrique. Ces calculs ont été réalisés pour un tube ioniseur de 3 cm de long et de 4 mm de diamètre associé à une cavité (voir texte).

Le dispositif a été calibré en température, jusqu'à 1750 K pour la cavité, 2400 K pour le tube en graphite et 2600 K pour le tube en rhénium.

La mesure d'efficacité a été simplement réalisée en envoyant un pulse d'ions dans la cavité, pulse dont la charge totale était connue via l'intégrale sur le temps de la mesure du pulse de courant (voir illustration Figure 24). La mesure du courant collecté sur la coupe de Faraday située après le séparateur et son intégration sur le temps ont permis de déterminer l'efficacité d'ionisation du tube, avec une erreur estimée à 10%.

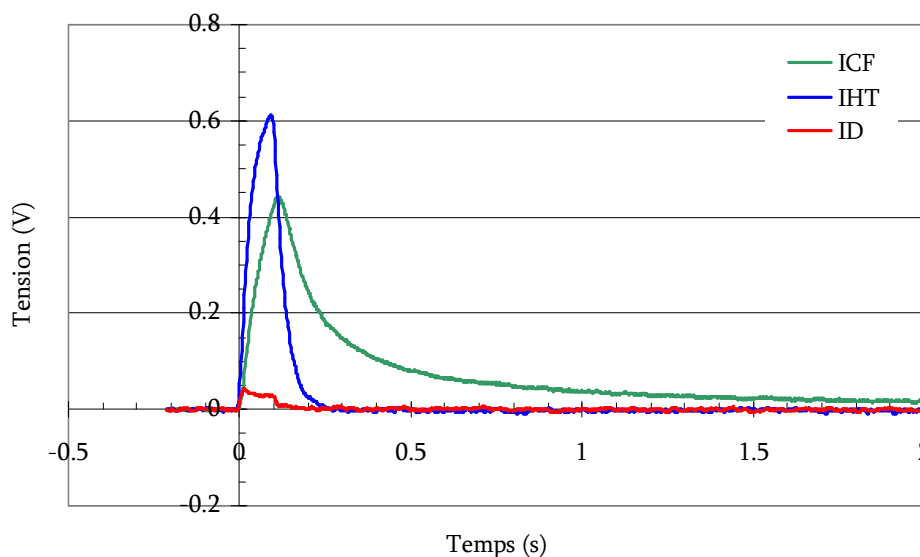


Figure 24 : Exemple de mesure de courant d'ions IHT injecté dans la cavité et de courant d'ions ICF mesuré sur la coupe de Faraday après séparateur, réalisée pour le potassium avec le tube en rhénium à une température de 1670 K. Ces réponses correspondent aux tensions mesurées, converties ultérieurement en courant en fonction de la résistance du circuit de mesure. ID correspond au courant déposé sur un diaphragme à l'entrée de la cavité. IHT est corrigé de ce courant pour chaque mesure.

La synthèse des résultats est présentée Figure 25. L'efficacité est représentée en fonction du champ électrique appliqué dans le tube. Pour les tubes en graphite et en rhénium, on observe une variation de l'efficacité d'ionisation d'un facteur ~ 5 pour un champ électrique compris entre 0.9 et 1V/cm. Sur cette plage, la variation de température ne peut pas engendrer une variation de la probabilité d'ionisation par contact pouvant expliquer une telle variation d'efficacité.

Ce résultat expérimental n'a pas pu être rigoureusement reproduit par le calcul. Il permet cependant de quantifier l'effet d'un champ électrique dans le tube d'une source à ionisation sur efficacité de la source. Ce résultat semble évident mais à l'époque de ces travaux, cette technique était rarement mise en oeuvre lors de la conception de ce type de source. Ces mesures montrent de plus qu'il a été expérimentalement possible d'obtenir ce gain en efficacité à des températures de tubes supportables par les matériaux pendant

plusieurs semaines (1800 K pour le graphite et 2200 K pour le rhénium). Le principe a donc été retenu pour la conception de la source à ionisation de surface de SPIRAL 2.

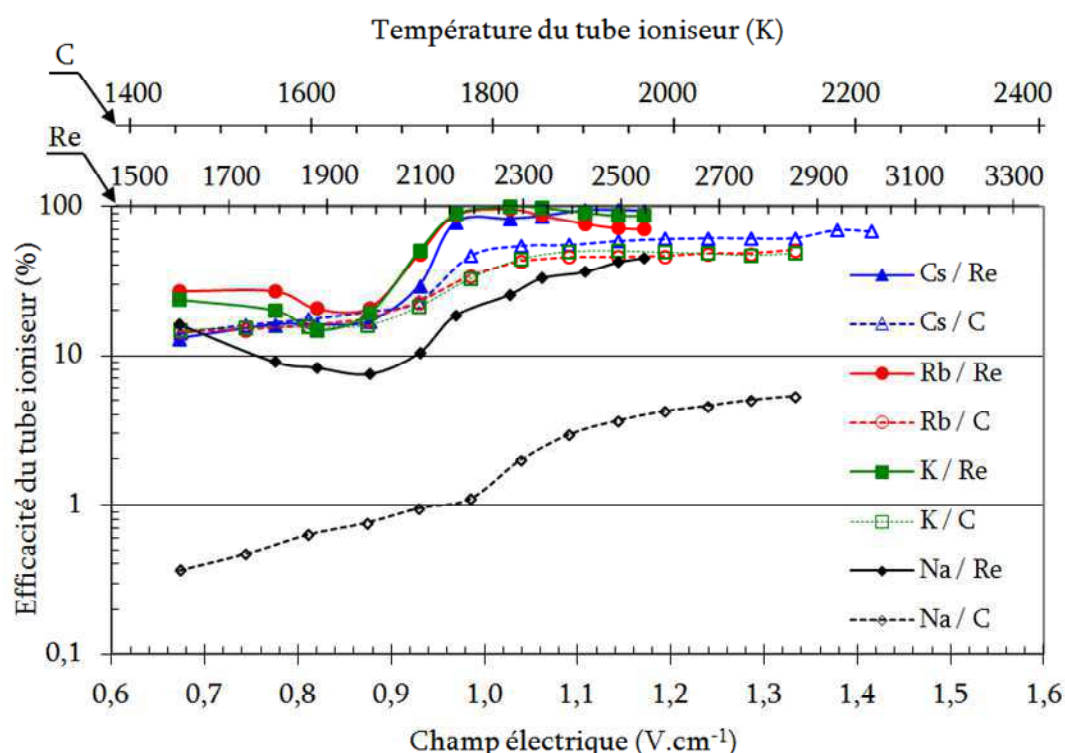


Figure 25 : Graphique présentant l'efficacité du tube ioniseur en fonction du champ électrique et de la température dans le tube ioniseur. Les points pleins correspondent à un tube ioniseur en rhénium et les points creux à un tube en carbone. La température des tubes est indiquée en abscisses au dessus du graphe.

Les efficacités d'ionisation des atomes de Cs, Rb, K et Na à haute température sont proches de 100% dans le cas du tube en rhénium. Dans le cas du graphite, elles sont plus faibles qu'attendues. Elles auraient dû atteindre une valeur proche de 100% : les meilleures ne sont que de 60%. La Figure 26 fournit une ébauche d'explication. L'efficacité de transformation totale (cavité+tube ioniseur en rhénium) diminue lorsque le courant du pulse d'ions injectés par le canon augmente. Cet effet a été attribué à la modification du travail de sortie de la surface engendrée par la densité des alcalins en surface. Cet effet est plus important pour les alcalins plus lourds, peut être du fait de leur temps de résidence en surface plus important et de leur potentiel d'ionisation plus faible. Dans le cas du tube en graphite, cet effet n'a pas été mesuré mais a déjà été observé par d'autres expérimentateurs. Il est donc possible de supposer que cet effet soit à l'origine des faibles efficacités d'ionisation obtenues avec le tube en graphite. La mesure de l'efficacité du tube de graphite en fonction du courant injecté permettrait de s'en assurer.

Cette altération de l'efficacité d'ionisation du rhénium devra être gardée à l'esprit lors de la conception des futurs dispositifs d'ionisation de surface. Dans le cas de SPIRAL 2, le taux de production d'alcalins dans la cible d'UCx (principalement Cs et Rb)

est estimé à $1\mu\text{A}$. L'efficacité d'ionisation ne devrait donc être que faiblement altérée. Mais les alcalins sont-ils les seuls éléments produits dans la cible susceptibles de donner lieu à cet effet ?

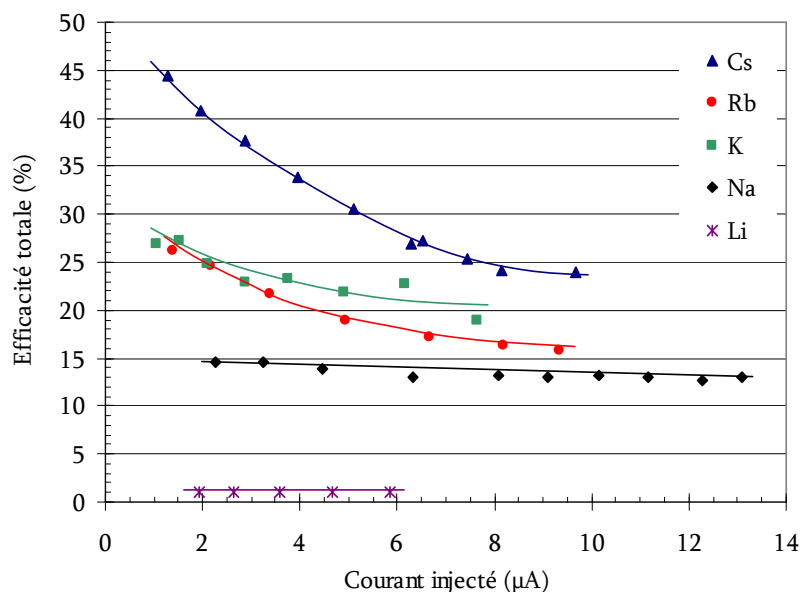


Figure 26 : Efficacité totale du système cavité+tube ioniseur en fonction du courant injecté dans la cavité. Cavité à une température de 1700 K et tube en rhénium à une température de 2440 K. Les lignes ne sont là que pour guider l'œil.

Les mesures de temps de réponses dans le tube d'ionisation et de temps de résidence des atomes alcalins sur le graphite, ainsi que la corrélation entre efficacité d'ionisation et temps de réponse sont présentées au paragraphe 4.13.

3.15 Source à Ionisation de Surface pour SPIRAL 2

Development of a surface ionization source for the SPIRAL 2 project

A. Pichard, P. Jardin, M.-G. Saint-Laurent, R. Frigot, O. Bajeat, P. Delahaye, M. Dubois, H. Fränberg, P. Lecomte, P. Leherissier, R. Leroy, N. Lecesne, L. Maunoury, A Méry, J.Y. Pacquet and the GANISOL group. *Rev. Scient. Instrum.* **81** (2010) 02A908

La conception de la source à ionisation de surface destinée à l'ionisation des atomes radioactifs d'alcalins issus de la cible d'UC de SPIRAL 2 découle directement des résultats obtenus avec le dispositif SISTHE. La position de la cible d'UC dans le module par rapport à l'axe du faisceau d'ions radioactifs impose une distance d'environ 20 cm entre la cible et le tube d'ionisation, et un tube ioniseur perpendiculaire au tube de transfert entre cible et source (Figure 27). Pour minimiser le temps de transit des alcalins dans le tube de transfert et le tube ioniseur, ils ont été réalisés à l'aide de feuilles de rhénium dont l'épaisseur était respectivement de $75\mu\text{m}$ et $125\mu\text{m}$. Ainsi, les courants traversant chacun de ces tubes

permettaient d'obtenir un champ électrique de l'ordre du volt par cm dans le ioniseur et de l'ordre de 0.5 V/cm dans le tube de transfert.

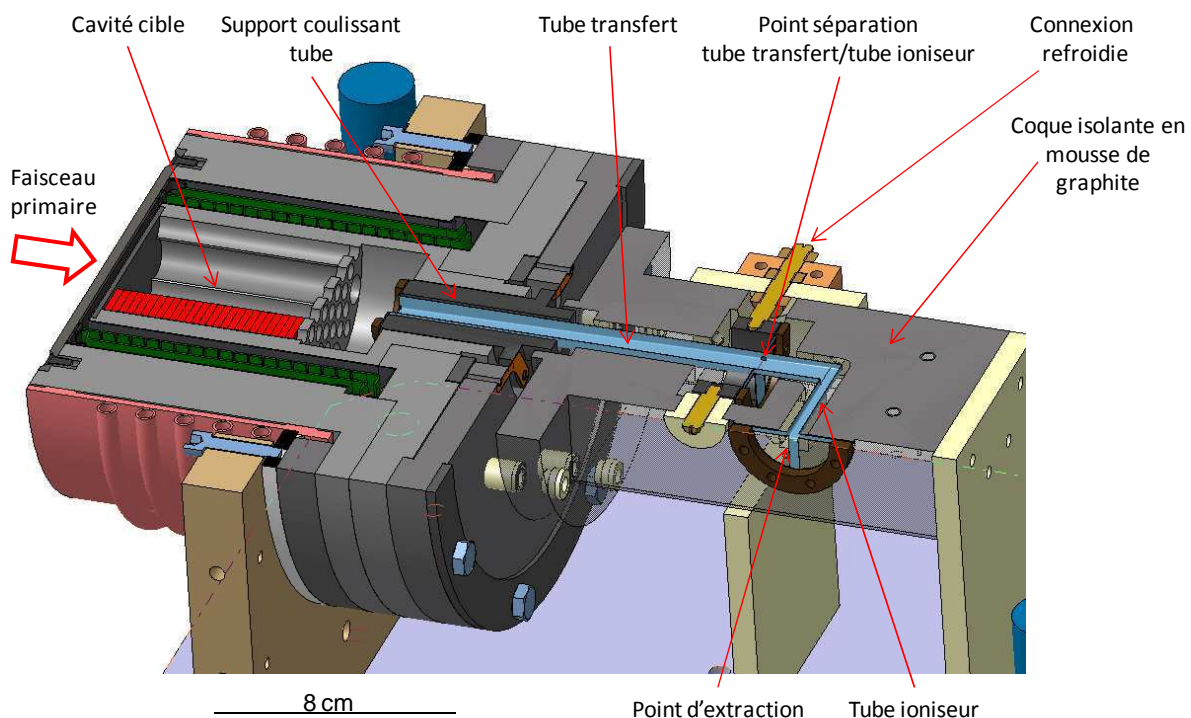


Figure 27 : Dessin en coupe de l'ECS de SPIRAL 2 utilisant une source à ionisation de surface

Le tube de transfert présentait volontairement une section importante à son entrée (10 mm x 10 mm) pour limiter le risque de saturation observé avec SISTHE lorsque le flux d'alcalins injecté dans le tube augmente. La section importante présentait aussi l'avantage de créer un champ électrique de fuite important dans la cavité cible, susceptible d'attirer les ions présents dans la cavité vers l'entrée du tube de transfert et donc de limiter leur temps d'effusion.

Pour une température de 1000°C dans la cavité du four, la température observée dans les tubes était partout proche de 2000°C. Les conditions étaient donc réunies pour mesurer le temps de transit d'atomes alcalins dans l'ECS. Pour cela, un canon à ions spécifique a été conçu pour injecter des pulses d'ions alcalins dans la cible de carbone, côté faisceau primaire. Hélas ce développement a été mis en suspens car durant la calibration en température de l'ensemble, le non respect d'une spécification matérielle a conduit à la destruction des tubes. Ensuite, la hiérarchisation des priorités de développement des ECS faite sur la base des lettres d'intention des futurs utilisateurs de SPIRAL 2 a placé la production d'ions radioactifs alcalins en fin de liste. La qualité du travail effectué par A. Pichard permettra cependant une reprise aisée de l'étude.

3.16 Evolution de la cavité cible des ECS de SPIRAL 1 :

Au cours des dix premières années d'exploitation, l'ECS de SPIRAL 1 a subi quelques améliorations : une cible destinée à la production de noyaux d'He radioactifs a été conçue, le container cible a été transformé et l'injection HF modifiée. Sa forme est cependant restée relativement proche de la version originelle.

La puissance des faisceaux de Ne, Ar, Kr et Xe était jusqu'à présent limitée à 1.5 kW, conformément aux résultats de l'étude thermique initiale. Cette limitation était en partie due au désir de faire une cible unique qui permettrait de produire des noyaux radioactifs ayant des parcours très différents dans la matière. Une fois la forme adoptée, la faveur a été donnée à l'exploitation de cette cible plutôt qu'à son évolution.

Produire des ions ^{118}Xe via la réaction de fusion évaporation $^{28}\text{Si}(6.95 \text{ A.MeV}) + \text{Mo} \rightarrow ^{118}\text{Xe}$ avec l'ECS de SPIRAL 1 était envisageable moyennant de remplacer la fenêtre d'entrée du container cible par une feuille mince de Mo. Les fragments seraient stoppés dans la cible puis suivraient le même processus de transformation en ions que les isotopes de gaz rares habituellement produits. La dispersion angulaire des produits induite par la réaction nécessitait cependant d'augmenter le diamètre de la cible graphite pour y arrêter la majorité des produits de réaction. Et pour que celle-ci reste à température élevée malgré son augmentation de diamètre, le système de chauffage additionnel devait être aussi ré-étudié. Ces besoins étaient compatibles avec une augmentation de la puissance de faisceau primaire admissible ; une étude commune a donc été menée, et sa concrétisation est donnée Figure 28

Pour augmenter l'efficacité de transformation dans l'ECS, plusieurs techniques ont été mises en œuvre. Le flux de gaz désorbé par la cible et son temps de relâchement ont été réduits en réduisant le volume du container de la cible, en le concevant de façon à ce que toutes ses parois soient à plusieurs centaines de degré, et en séparant les volumes de façon à ce que les gaz antérieurement relâchés par les parois de l'enceinte à vide ne transitent pas au travers de la source d'ionisation, mais soient évacués via la ligne du faisceau primaire. Cette réduction des gaz indésirables facilite l'optimisation du fonctionnement de l'ECS par une optimisation de la nature et de la quantité de gaz support. Le temps d'effusion a aussi été réduit grâce à plusieurs mesures : par une réduction du volume des enceintes cible-source de l'ECS, par une augmentation de la conductance entre container cible et chambre source, par une simplification des géométries de la cible et de son environnement. Enfin, le diamètre de la chambre de la source a été augmenté, conduisant à une amélioration de l'efficacité d'ionisation.

Le gain attendu en intensité pour les ions radioactifs dépendra, du gain en intensité de faisceau primaire (facteur 3 au plus), du gain en efficacité de transformation (facteur 1 à 3 selon élément et état de charge) et du gain lié à la réduction du temps de réponse qui dépendra de la durée de vie des noyaux.

Le premier test en ligne a été mené en septembre 2013. Bien que la puissance disponible du faisceau primaire ait été limitée à 1.7 kW, et donc que les conditions du test n'aient pas été optimales, les résultats sont encourageants : un facteur trois a été gagné sur l'efficacité de production des ions $^{19}\text{Ne}^{4+}$ dont la majeure partie est attribuée à une

amélioration de l'efficacité d'ionisation. La traduction de ce gain d'efficacité en termes de réduction du temps de transformation atomes-ions sera évaluée lors d'un test de production à partir d'isotopes du Ne de différentes durées de vie prévu fin octobre 2013.

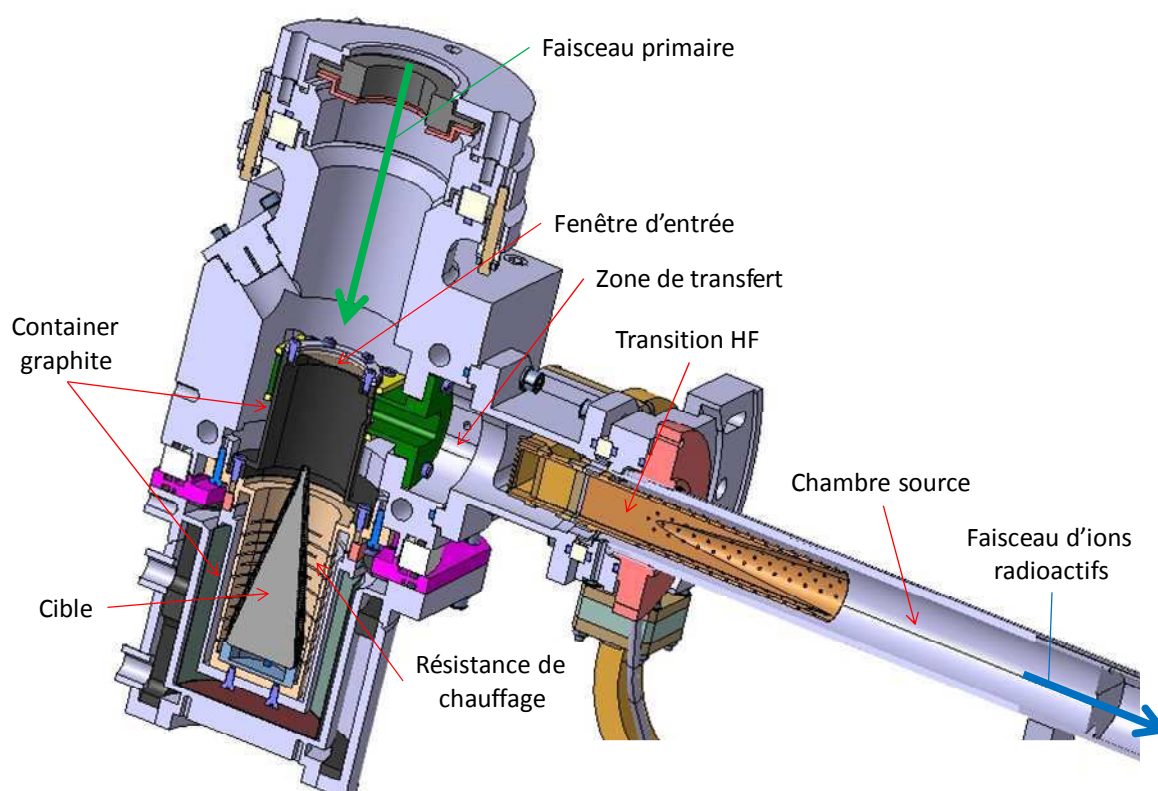


Figure 28 : Dessin en coupe de l'évolution de l'ECS « amélioré » de SPIRAL 1.

4 Temps de transformation des atomes en ions dans les dispositifs de production d'ions radioactifs ISOL

4.1 Introduction

Pour mener les études de systèmes de production d'ions radioactifs, un banc d'étude appelé « SIRa » (Séparateur d'Ions Radioactifs) a été installé au GANIL dans les années 1990. Ce banc permet de produire des éléments radioactifs par envoi d'un faisceau primaire d'ions stables dans la cible, ou d'implanter dans la cible un faisceau d'ions radioactifs préalablement produits par le dispositif « SSISS » (Superconducting Intense Source for Secondary Ions) du GANIL. Il est alors possible de déterminer l'efficacité de transformation atome-ion pour les éléments radioactifs de deux façons : en faisant le rapport du courant d'ions émergeant de l'ECS divisé -soit par le nombre d'isotopes produits dans la cible, déterminé par calcul -soit par le courant d'ions implantés dans la cible. Que les éléments d'intérêt soient stables ou radioactifs, les processus de diffusion, d'effusion, d'ionisation et de transmission conditionnent la valeur de l'efficacité de transformation. Dans le cas d'éléments radioactifs, des imprécisions supplémentaires interviennent dans la détermination de l'efficacité de transformation :

- l'incertitude sur la section efficace de production
- l'erreur sur la mesure du courant d'ions implantés dans le cas d'un faisceau de noyaux radioactifs produits à l'aide du dispositif SSISS.
- l'erreur sur la détermination du flux d'ions en sortie de l'ECS obtenue via une mesure de l'activité engendrée par l'implantation des ions sur une surface

La détermination du temps de transformation sur le banc SIRa est possible en donnant une structure temporelle au faisceau primaire d'ions, c'est-à-dire en alternant des périodes de production ou d'implantation avec des périodes sans production ou implantation. Il est évidemment préférable que la période de hachage soit supérieure au temps de transformation pour que la forme de la réponse en temps enregistrée ne soit pas tronquée. Le signal mesuré constitue une information globale du temps de transformation. L'amplitude est entachée des mêmes imprécisions que l'efficacité. La forme résulte des effets de l'ensemble des processus impliqués. Une description analytique décrite au travers de plusieurs thèses^{27,33,41,34} antérieures effectuées au GANIL supposait une répartition temporelle séquentielle entre processus. Compte tenu du nombre de paramètres libres qui intervenaient pour chaque processus, obtenir une concordance du modèle avec la mesure était possible mais rendait parfois la détermination de chaque paramètre sujet à caution, l'effet entre paramètres de différents processus pouvant se compenser. Cette démarche a cependant permis d'obtenir une connaissance du fonctionnement d'un ECS suffisante pour concevoir la première version de l'ECS de SPIRAL 1, et prédire des taux de production d'ions radioactifs. Lors de son exploitation, son comportement a soulevé des questions auxquelles il n'a été possible de répondre qu'après avoir entamé une réflexion plus poussée sur le rôle de chaque processus dans le temps de réponse.

L'étude de la réponse temporelle des dispositifs de production d'ions radioactifs débute au cours de l'année 2000, principalement motivée par deux raisons :

- La conviction que la réduction des écarts entre intensités d'ions radioactifs obtenues lors des expériences de développement et intensités obtenues en production régulière passait par une meilleure séparation des processus de production
- Le sentiment d'une connaissance approximative de la contribution temporelle de chaque processus dans la transformation des atomes en ions à l'intérieur des ECS de SPIRAL1

Pour prédire le comportement temporel des ECS, une solution aurait pu consister à utiliser un code « Monté-Carlo » de type RIBO³⁵ reproduisant l'histoire de chaque particule, pour autant qu'il nous est possible de la reproduire : cela nécessite d'identifier l'ensemble des paramètres qui interviennent, et de les maîtriser pour savoir quelles valeurs injecter dans le code de calcul. Ensuite, avant d'utiliser le code pour rendre compte de systèmes complexes, il doit être validé par une confrontation à des résultats expérimentaux obtenus avec des dispositifs simples. Enfin, même si le code est validé, aucune équation ne sera disponible pour expliquer le résultat, ni pour montrer comment évoluera le résultat en fonction des différentes variables. Si dans certains cas ce type d'approche est difficilement contournable, elle l'a souvent été dans ce travail où l'approche analytique a été systématiquement privilégiée... jusqu'à être mise en échec par l'obtention de systèmes d'équations différentielles insolubles analytiquement. Ce travail repose donc principalement sur la confrontation de résultats expérimentaux à des descriptions analytiques.

4.2 Injection d'un pulse de gaz issu d'un jet.

Pré-étude d'un générateur de jet supersonique

Nicolas GERZE, Stage de fin d'étude, 17 Avril au 22 Juin 2001, IUT de Mesures Physiques de CAEN. Rapport interne GANIL

Le choix d'une source ECR pour l'ionisation des atomes radioactifs de SPIRAL 1 et l'expérience des techniciens du GANIL dans la production d'ions stables à l'aide de source ECR faisait de ces sources un objet d'étude privilégié pour l'étude du temps de transformation atome-ion. Auparavant, il a fallu chercher comment effectuer la mesure de ce temps car celle-ci n'était pas commune. Le principe qui semblait *a priori* le plus simple à mettre en oeuvre était celui qui consistait à introduire un pulse de gaz à « l'entrée » de la source, gaz rare pour éviter tout contact, et à mesurer l'évolution en temps du pulse d'ions consécutif en sortie de source. Pour dimensionner le dispositif, il était nécessaire de connaître au préalable l'ordre de grandeur du temps de réponse. Plusieurs mesures du temps de « réponse » dans diverses sources ECR avaient été réalisées^{36,37} avec différentes

méthodes et des atomes d'éléments condensables. Elles montraient toutes des temps entre instant d'injection et instant de sortie des ions qui augmentaient avec l'état de charge des ions, allant de la milliseconde pour les états de charge faible à plusieurs dizaines de millisecondes pour les états de charge de 20 et plus. Par extrapolation aux ions faiblement-chargés, il était tentant de déduire de ces mesures que le temps de transformation des atomes en ions mono-chargés dans la source devait être proche voir inférieur à la milliseconde. Pour ne pas élargir la réponse mesurée par la largeur du pulse injecté, la largeur en temps du pulse a été arbitrairement fixée à une centaine de micro-secondes.

Le premier but était de mesurer le temps de réponse d'une source ECR dans le cas de l'ionisation d'atomes de gaz rares. Ces gaz présentent quelques avantages par rapport à des atomes condensables : leur manipulation est simple (inertes, conditionnés en bouteille), leur injection en quantité contrôlée dans une source est possible par simple recours à une fuite calibrée, leur coût peut être relativement faible et leur temps de résidence sur les parois peut être négligé à température ambiante. Une étude de faisabilité de pulses de gaz rares a donc été entamée. En plus du temps réduit de 100 μ s, le pulse devait répondre à d'autres exigences : contenir suffisamment d'atomes pour qu'une fois ionisés, le courant d'ions consécutifs puisse être mesuré avec une cage de Faraday standard (résolution de ~ 1 nA). Si la durée de la réponse est de l'ordre de 1 ms, le nombre minimum d'atomes contenu dans le pulse devait être de l'ordre de 10^7 (si tous les atomes étaient ionisés). D'un autre côté, le nombre d'atomes injectés par le pulse devait être suffisamment faible pour ne pas perturber les conditions de fonctionnement de la source pendant la mesure. Si l'on accepte une perturbation qui se traduit par une fluctuation du courant total débité par la source de 1%, la perturbation maximum devait être de l'ordre de 1 μ A, donc le pulse au maximum de 10^{10} atomes. Si le temps de réponse s'avérait plus long que 1 ms, le nombre d'atomes devrait évidemment être augmenté. Enfin, la période de répétition des pulses devait être suffisamment longue par rapport à la durée des pulses pour que, dans le cas de temps de réponse longs, les réponses ne s'empilent pas. Ces quelques chiffres donnent la base du dimensionnement du système de mesure.

Aucune vanne commerciale ne permettait une ouverture et une fermeture dans un temps inférieur ou égal à 100 μ s. Un jet effusif collimaté a donc été envisagé. Il aurait été haché par un disque tournant muni d'une fente. Pour réaliser la collimation, il semblait nécessaire de disposer d'une succession de diaphragmes. Pour éviter la dispersion en temps liée à l'éloignement du point de formation du paquet d'atomes de son point d'injection dans la source, l'utilisation d'un jet supersonique³⁸ a été considérée. Ce type de jet est disponible dans le commerce. Grâce à des conditions de détente très particulières dans une tuyère, il permet de réduire la dispersion en vitesse des atomes à quelques dizaine de mètres par seconde (≈ 25 m/s pour l'Ar à température ambiante), à comparer à une vitesse de groupe de plusieurs centaines de mètres par seconde. Mais pour obtenir de telles caractéristiques, le flux du jet est faible (5×10^7 pps pour une section d'environ 1 mm²) donc 5×10^3 atomes par pulse de 100 μ s.

L'emploi de jet effusif ou pulsé ne pouvait donc pas donner satisfaction. En plus des exigences de durée de pulse et de densité que ni l'un ni l'autre ne respectaient, les deux dispositifs nécessitaient un système de pompage différentiel qui les rendait onéreux et difficile à mettre en œuvre. La production de pulse par jet d'atomes haché n'a donc pas été retenue.

4.3 Mesure de temps de réponse à l'aide d'une vanne de gaz piézo-électrique.

Dans le cadre de la collaboration « charge breeding²⁸ », la source Minimono a été caractérisée à GANIL avant transfert de son principe à ISOLDE. Une tentative de mesure de temps de réponse a été effectuée en utilisant une vanne pulsée de type piézo-électrique. Une cale piézo-électrique supportant le clapet de la vanne était alimentée par un générateur de pulses. Le temps de réponse mesuré en sortie de la source était beaucoup plus long que les quelques millisecondes attendues et le fonctionnement de la vanne était surprenant : son ouverture intervenait à une tension supérieure à sa fermeture. Cette « hystérésis » était-il responsable de la forme de la réponse observée, qui présentait un temps de montée plus court (de l'ordre de la milliseconde) que le temps de descente (de l'ordre de quelques dizaines de millisecondes pour les ions allant de l' He^+ au Kr^+) ? Si oui, il était nécessaire de changer de vanne pulsée et de recommencer le test. Si non, il allait falloir trouver une explication à cette observation.

4.4 Développement d'un système de mesure de temps de transformation dans une source ECR.

Conception d'un dispositif de mesure du temps de transformation des atomes en ions dans une source ECR. *Thomas DROBERT, Stage IUP, 14 Janvier au 1^{er} Mars 2002, IUP Génie des matériaux, Université d'EVRY. Rapport interne GANIL.*

A la même période, des mesures de temps de réponse ont été effectuées par R.C. Vondrasek³⁹ en employant une vanne rapide à solénoïde permettant de délivrer des pulses de l'ordre de 100 μs . Cette vanne du commerce a été associée à un système de commande rapide. La caractérisation de l'ensemble a montré qu'une durée de pulse de 100 μs ne pouvait pas être atteinte car la fréquence propre de la vanne l'interdisait. La durée minimum était de ~ 1.2 ms. Malgré cette limitation, des tests pouvaient être entamés. La simplicité du dispositif (Figure 29) le rendait facile à transporter et à installer sur n'importe quelle source du GANIL.

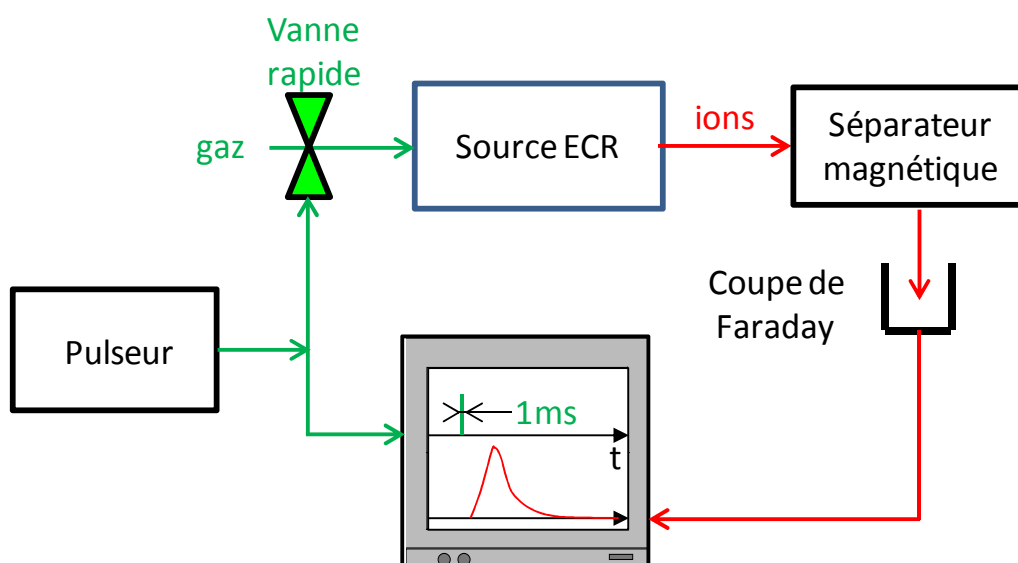


Figure 29 : Dispositif de mesure de temps de réponse avec vanne pulsée.

Les premiers tests ont été effectués avec la source Minimono. Le gaz employé était de l'argon. La forme de la réponse (Figure 30) était similaire à celle obtenue avec la vanne piézo-électrique, et la descente du signal ne pouvait pas être attribuée au temps de fermeture de la vanne.

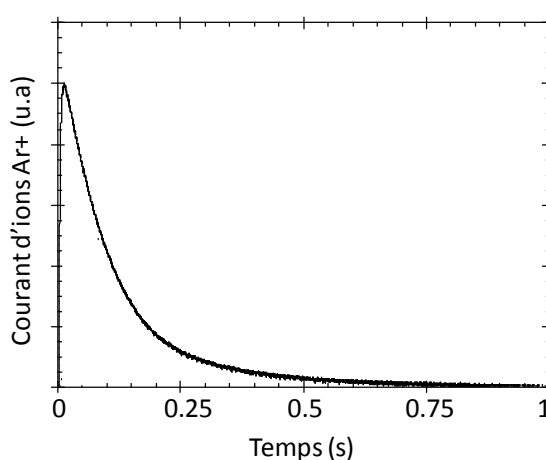


Figure 30 : Temps de réponse de la transformation $\text{Ar} \rightarrow \text{Ar}^+$

Une mesure systématique a été entreprise pour observer l'évolution du temps de transformation atome-ion pour les gaz He, Ne et Ar. Le temps dépendait du gaz utilisé et pour un même gaz, le temps diminuait lorsque l'efficacité augmentait.

4.5 Remise en question de l'approche du temps de réponse dans les sources ECR

Optimization of ECR singly-charged ion sources for the radioactive ion beam production

P. Jardin, W. Farabolini, G. Gaubert, J.Y. Pacquet, T. Drobert, J. Cornell, C. Barue, C. Canet, M. Dupuis, J-L. Flambard, N. Lecesne, P. Leherissier, F. Lemagnen, R. Leroy
Nuc. Instrum. Methods B **204** (2003) 377-381

Avant les sources ECR présentées dans ce mémoire, aucune source ECR d'ions mono-chargés n'était utilisée pour ioniser et confiner des ions radioactifs. Il existait bien une source d'ions mono-chargés à TRIUMF utilisant la résonance cyclotronique électronique comme moyen d'ionisation, mais le confinement des atomes et des ions était en partie assuré par une chambre en quartz et pas uniquement par le gradient de champ magnétique. Le comportement temporel des sources ECR d'ions mono-chargés avait donc été très peu étudié car il présentait peu d'intérêt pour des sources fonctionnant en régime permanent et ionisant des atomes stables. La forme inattendue de la réponse en temps observée nous a conduits à reconsidérer l'image que nous avions du fonctionnement des sources d'ionisation. Depuis l'apparition des sources ECR en 1965, dans le but de faciliter la post-accélération des faisceaux, la charge des ions n'a cessé d'augmenter, ainsi que leurs intensités pour répondre aux besoins des post-accélérateurs et de statistique des expériences. Cette évolution a été entre autres possible grâce à l'utilisation de champs magnétiques intenses et de radio-fréquences élevées. Après 35 ans d'améliorations, la plupart des sources ECR ionisent les gaz avec une efficacité proche de 100%. Une telle efficacité implique qu'aucun atome n'a le temps de sortir de la source : tous ceux qui pénètrent dans la source sont ionisés, et le temps qu'ils passent dans la source l'est principalement sous forme d'ions confinés dans le plasma. Le temps de réponse que nous avons mesuré pour les ions mono-chargés issus de notre source ECR semblait incohérent avec les temps des rares mesures disponibles dans la littérature.

Les images tirées des mesures que nous faisons et les images tirées des mesures antérieures ont été réconciliées en supposant qu'une source ECR pouvait avoir une efficacité de transformation des gaz inférieure, voire très inférieure à 100%. Cette supposition est évidente du fait que peu de transformations présentent une efficacité de 100%, mais les idées souvent répétées semblent parfois devenir des vérités. Celle qui consistait à dire qu'un gaz était ionisé avec une efficacité de 100% dans une source ECR en faisait partie. Elle pouvait cependant être simplement remise en question en considérant l'histoire d'un atome dans une source d'ions mono-chargés. La densité électronique et l'énergie des électrons y sont généralement plus faibles que dans une source d'ions multi-chargés. La probabilité qu'un atome d'être ionisé lorsqu'il traverse le plasma est donc plus faible. Si cette probabilité est suffisamment faible, il aura la possibilité de traverser plusieurs fois le plasma avant d'être ionisé. Au cours de ces allers-retours, il est possible qu'il sorte de la chambre de la source ECR par l'orifice de sortie de la source (orifice de l'électrode dite « plasma »). Cette image implique les évidences suivantes, souvent oubliées des utilisateurs de sources ECR et qu'il est donc bon de rappeler :

- que l'efficacité de transformation atome-ion peut être inférieure à 100% puisque certains atomes sortent avant d'être ionisés,
- que l'efficacité est liée au temps que les atomes passent dans l'état d'atomes et dans l'état d'ions.
- que le temps que passent les atomes dans la source peut être très différent du seul temps de confinement dans le plasma.

L'étape suivante a consisté à établir la relation entre temps et efficacité. Pour cela, on suppose que le pulse d'atomes donne lieu à l'apparition immédiate d'une densité uniforme d'atomes dans le volume de la source. Si la variation dn_a/dt du nombre d'atomes n_a en fonction du temps est supposée proportionnelle au nombre d'atomes présents dans la source, cette variation s'exprime

$$\frac{dn_a}{dt} = -(\lambda_{eff} + \lambda_i).n_a$$

λ_i et λ_{eff} sont les facteurs de proportionnalité, appelés respectivement taux d'ionisation et taux d'effusion atomique. Chaque taux est égal à l'inverse du temps caractéristique du processus correspondant ($\lambda_i = 1/T_i$). De la même façon, la variation dn_i/dt du nombre d'ions n_i dans la source en fonction du temps est donnée par l'expression

$$\frac{dn_i}{dt} = \lambda_i.n_a - \lambda_{ieff}.n_i$$

où λ_{ieff} est le taux d'effusion ionique en dehors de la source. En posant que le nombre d'ions présents dans la source à $t = 0$ est égal à 0, la résolution de ce système d'équations mène à l'expression du courant d'ions en sortie de la source:

$$\left. \frac{dn_i}{dt} \right|_{\text{sortie source}} = N_0 \frac{\lambda_{ieff}.\lambda_i}{\lambda_{ieff} - \lambda_i - \lambda_{eff}} [e^{-(\lambda_{eff} + \lambda_i).t} - e^{-\lambda_{ieff}.t}] \quad (\text{Équation 1})$$

En intégrant le flux d'ions $\frac{dn_i}{dt}$ en sortie de la source de zéro à l'infini et en divisant le résultat par le nombre N_0 d'atomes injectés par le pulse, on obtient l'efficacité ε_{ai} de transformation atomes-ions :

$$\varepsilon_{ai} = \frac{\lambda_i}{\lambda_{eff} + \lambda_i} \quad (\text{Équation 2})$$

Efficacité et temps sont donc liés par une relation très simple.

Cette relation a été validée par nos premières mesures de temps (Figure 31). A très faible efficacité d'ionisation le temps mesuré devait tendre vers le temps d'effusion atomique seul, qu'il était possible de déterminer préalablement à partir de la géométrie de la chambre de la source. Lorsque l'efficacité augmentait, le temps devait diminuer linéairement et atteindre zéro pour une efficacité d'ionisation de 100%. Une droite devait relier ces deux points. La source utilisée ne permettait pas d'obtenir une efficacité de 100%. Les mesures ont donc été faites à plus basses efficacités, mais elles étaient en accord avec cette évolution.

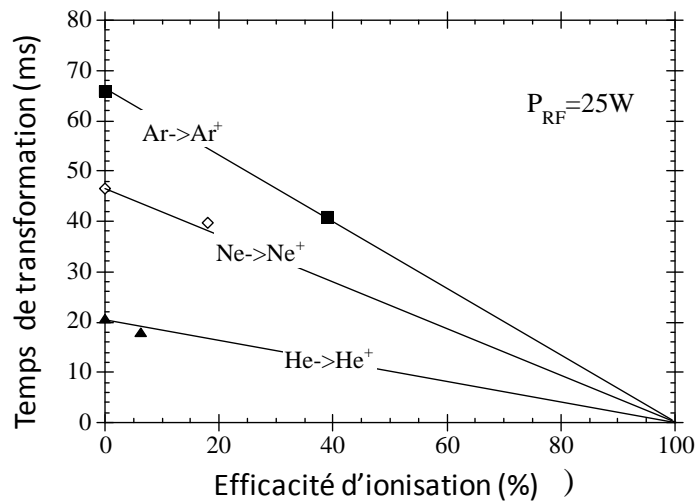


Figure 31 : Temps de transformation des atomes d'He, Ne et Ar en ions mono-chargés en fonction de l'efficacité d'ionisation de la source (pour un temps correspondant à 50% de l'intégrale de la réponse).

Le premier but visé par ce travail semblait atteint : la relation entre temps de transformation et efficacité était posée. Ce résultat a deux conséquences expérimentales importantes.

1 - Il est possible de déterminer l'efficacité d'ionisation de gaz dans une source ECR sans avoir recours à une mesure absolue du nombre d'atomes injectés et du nombre d'ions extraits. La seule connaissance de la géométrie de la source et de la forme de la réponse en temps suffit

2 - La description ci-dessus nous permet de nous affranchir d'une expérience en ligne pour déterminer le temps de transformation d'un atome radioactif en ion, au moins pour l'efficacité de transformation dans la source. Il suffit d'effectuer une mesure hors ligne du temps de transformation pour un élément, d'en extraire les taux caractéristiques et d'injecter dans les équations ci-dessus le taux λ de décroissance radioactive de l'isotope comme suit :

$$\frac{dn_a}{dt} = -(\lambda_{eff} + \lambda_i + \lambda).n_a$$

$$\frac{dn_i}{dt} = \lambda_i.n_a - (\lambda_{ieff} + \lambda).n_i$$

ce qui conduit à l'efficacité de transformation

$$\varepsilon_{ai} = \frac{\lambda_i}{\lambda_{eff} + \lambda_i + \lambda} \quad (\text{Équation 3})$$

La forme de cette relation met en évidence que l'efficacité de transformation résulte du rapport du taux de la voie de « sortie désirée », l'ionisation, sur la somme des taux de l'ensemble des voies de sortie. Les taux peuvent être considérés comme des probabilités par unité de temps. L'efficacité peut alors être vue comme le rapport de la probabilité de la voie d'ionisation sur la somme des probabilités des voies de disparition. Elle résulte d'une compétition entre voies, dont l'ouverture individuelle peut être changée en modifiant les paramètres qui la gouvernent (par exemple géométrie et température pour l'effusion atomique, et densité plasma pour l'ionisation). Cette compétition entre voies déduite pour l'efficacité de transformation a été plusieurs fois utilisée dans la suite de ce travail puisque la mise en équation de la dynamique d'écoulement des atomes dans les ECS reposait sur le même principe de proportionnalité entre variation d'une population et population. Ultérieurement, le sens de cette observation nous a conduits à considérer un ECS non plus comme un dispositif impliquant de nombreux processus élémentaires par lesquels les atomes devaient passer avant de sortir sous forme d'ions, mais comme un ensemble de voies qui s'offrent aux atomes, et dont l'ouverture est définie par les processus qu'elles mettent en jeu. Connaissant la voie de sortie, cette approche permet de déterminer très rapidement les modifications à réaliser pour favoriser une voie, ou au moins d'apprécier l'influence de chaque voie sur l'efficacité. Les paragraphes suivants illustrent cette approche.

La forme de cette relation met aussi en évidence que l'efficacité de transformation ne peut pas être exprimée sous la forme du simple produit de l'efficacité d'effusion par l'efficacité d'ionisation, comme cela apparaît parfois dans la littérature. Cela aurait été possible dans le cas où les processus d'effusion et d'ionisation auraient été consécutifs, mais pas dans le cas où les populations d'atomes et d'ions sont liées.

4.6 Mesure de temps de réponse pour différentes sources ECR d'ions mono-chargés.

Des mesures systématiques de temps de réponse ont ensuite été effectuées pour différentes sources ECR. Elles ont toutes confirmé la relation entre temps et efficacité de transformation[§] (Figure 32)

[§] Augmenter l'efficacité permet de diminuer le temps de réponse. Cette augmentation peut être obtenue par une amélioration des capacités d'ionisation du plasma qui est très souvent accompagnée d'une distribution des ions produits parmi plusieurs états de charge. L'efficacité totale augmente donc généralement au détriment de l'abondance des ions produits dans chaque état de charge. Puisqu'un seul état

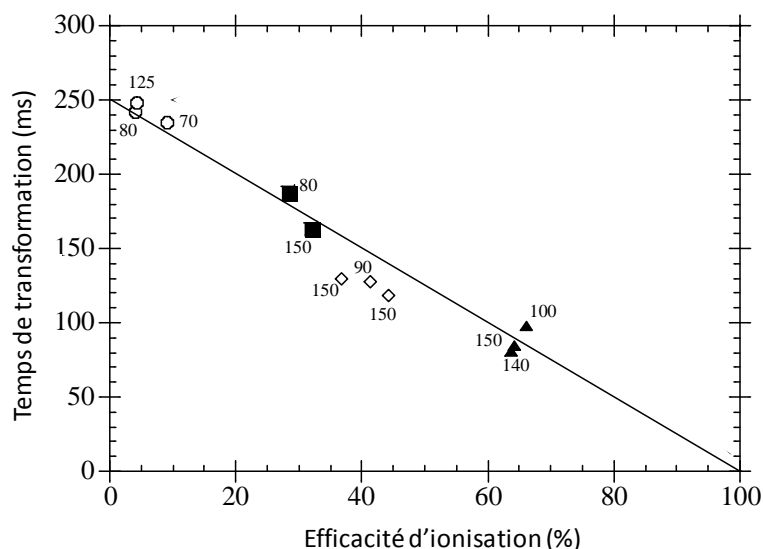


Figure 32 : Exemple de mesure de temps de transformation des atomes d'Ar en ions mono-chargés en fonction de l'efficacité d'ionisation de la source (pour un temps correspondant à 10% de l'intégrale de la réponse). Source Mono 1000. Les nombres à côté des points correspondent à la puissance HF injectée. Les différentes formes de points correspondent à différents gaz support.

Les mesures et le développement de la description analytique ont permis de mettre en évidence que temps de montée de la réponse est principalement régi par le temps caractéristique d'effusion ionique et par le temps d'invasion du volume source par le pulse d'atomes, et que le temps de descente est régi par les temps caractéristiques d'ionisation et d'effusion atomique. Toutes les réponses enregistrées ont présenté des temps de montée très courts comparés aux temps de descente, d'où l'on déduit que le temps caractéristique d'effusion ionique ($1/\lambda_{ieff}$) est, pour les sources utilisées, très court devant les temps d'effusion atomique et d'ionisation. Observer que les ions mono-chargés s'échappent rapidement de la source (λ_{ieff} élevé) est cohérent avec le court temps de confinement déduit des mesures faites avec des sources d'ions multi-chargés, mais le temps de confinement des ions dans le plasma était maintenant expérimentalement séparé du temps de transformation atome-ion.

Pour le concepteur d'ECS, une des conclusions pratiques de la relation entre temps de réponse et temps T_{eff} d'effusion atomique ($T_{eff} = V/C$, où V est le volume de la chambre et C la conductance de l'orifice de sortie) est qu'il faut supprimer les volumes

de charge est généralement utilisé, augmenter l'efficacité n'est utile en termes d'intensité finale que si le bilan est positif entre diminution du temps de transformation, particulièrement favorable à la production d'ions radioactifs de courte durée de vie, et augmentation du nombre d'ions dans l'état de charge. Cette remarque concerne particulièrement les sources d'ions multi-chargés dans lesquelles les temps de transformation augmentent avec l'état de charge (de l'ordre de quelques ms par état de charge) tout en distribuant les ions parmi un nombre d'états de charge important.

morts dans les systèmes de production d'ions radioactifs. Cette réduction du volume d'effusion est d'autant plus importante que le plasma de la source ECR employée est de faible densité. Cette conclusion est à l'origine de la forme particulière de la chambre de la source ECR MONOBOB2 réalisée pour le projet SPIRAL2 qui épouse la forme des lignes fermées de champ magnétique d'équimodule (voir Figure 14) et pour laquelle un système d'injection HF minimisant ces volumes morts a été choisi.

4.7 Amélioration de la description de la réponse en temps.

Etude du temps de transformation des atomes en ions dans les sources ECR

Wilfrid FARABOLINI, Ingénieur sénior, 1^{er} Février au 31 Octobre 2002, collaboration Européenne CHARGE BREEDING.

Effusion-ionization time evaluation in the production of radio-active ions at GANIL

Mélanie GENDRE, Stage ingénieur en Astrophysique, 6 Mai au 5 Juillet 2002, Université de Victoria, Canada. Rapport interne GANIL

Atom-to-ion transformation time in singly-charged ECRISs

P. Jardin, W. Farabolini, G. Gaubert, J.Y. Pacquet, J. Cornell, F. Durantel, C. Huet-Equilbec, N. Lecesne, R. Leroy, M.G. Saint Laurent, C. Barué, C. Canet, M. Dubois, M. Dupuis, J.L. Flambard, P. Leherissier, F. Lemagnen, O. Tuske, A.C.C Villari. Nuc. Instrum. Methods B 225 (2004) 374-382

La description précédente des réponses en temps a permis de reproduire avec un bon accord de nombreuses réponses mesurées. Il arrivait cependant que certaines réponses ne puissent pas être correctement reproduites.

La forme de l'expression (1) décrit un processus « d'effusions pures^h », atomique et ionique associées. Elle découle de l'hypothèse que les variations en temps des nombres d'atomes et d'ions dans la source sont linéairement liées aux nombres d'atomes et d'ions présents dans la source. Ceci implique d'une part que l'injection d'atomes dans la source n'induit pas d'effet non-linéaire, et d'autre part que la variation de densité d'atomes dans le volume de la source soit uniquement due à leur disparition via les voies d'effusion, d'ionisation ou de décroissance radioactive. Si ces conditions sont respectées, la forme de la réponse en temps peut être reproduite à l'aide de l'expression (1).

Effet non-linéaire dû à l'injection d'un pulse de gaz

Pour tenter de reproduire les écarts observés expérimentalement par rapport à l'expression (1), un terme de non linéarité a été introduit dans la description analytique précédente. Ce terme supposait que la variation de la densité du plasma était

^h L'expression « effusion pure » est employée pour désigner un processus d'effusion dont la réponse en temps peut être décrite par une exponentielle unique.

proportionnelle au nombre d'atomes injectés dans le pulse. Cette nouvelle description a permis de reproduire les réponses en temps obtenues dans le cas d'injection de pulses renfermant un trop grand nombre d'atomes et perturbant le plasma. Par la suite, les mesures ont été faites en contrôlant que la perturbation induite sur le courant total débité par la source était négligeable par rapport à ce courantⁱ (typiquement inférieur à 1/1000). Dans ces conditions, l'expression (1) a pu être utilisée pour reproduire les réponses enregistrées.

Densité d'atomes dans le volume de la source

L'expérience - et la théorie - montrent que pour respecter la condition de proportionnalité entre flux d'atomes sortant d'un volume et nombre d'atomes dans le volume, la géométrie du volume de la source où effusent les atomes doit être telle que le temps nécessaire à l'équilibre de la densité d'atomes dans la source soit négligeable comparé au temps de disparition des atomes de ce volume. Ceci implique

- Que le volume doit être « ouvert », c'est-à-dire que le rapport entre volume et surface entourant ce volume doit être maximum pour qu'il n'y ait pas d'inhomogénéité de densité entre volume proche de l'orifice de sortie et volumes éloignés
- Que la surface de l'orifice de sortie du volume doit être faible par rapport à la surface interne du volume pour que le gradient de densité généré par la disparition des atomes au travers de l'orifice soit aussi faible que possible

On en déduit que la forme idéale d'un volume de source ou d'ECS est une sphère munie d'un petit orifice. La réalisation des sources devant répondre à d'autres contraintes difficiles à concilier avec celles-ci, leurs chambres ne sont généralement pas sphériques. Des mesures montrent cependant que l'on peut obtenir une réponse purement effusive avec des ECS dont les chambres sont fortement éloignées des conditions idéales (voir ECS SPIRAL 1, paragraphe 4.9). L'exemple de l'ECS ECR de SPIRAL 2 montre quant à lui que sa géométrie ne satisfait plus à ces conditions (voir paragraphe 4.13)

4.8 Image du processus du temps de transformation des atomes en ions dans un ensemble cible-source

Le processus global de transformation atome-ion dans un système ISOL, de la production de l'atome dans la cible jusqu'à sa sortie de la source d'ionisation, est généralement divisé en trois principaux processus: la diffusion, l'effusion et l'ionisation.

ⁱ Les sources ECR utilisées débitaient typiquement des courants compris entre 100 μ A et 1 mA. Pour minimiser la perturbation engendrée dans le plasma par l'injection du pulse d'atomes, l'amplitude du nombre d'atomes injecté par chaque pulse était réduite au minimum, de façon à ce que le courant d'ions consécutif soit le plus faible possible. La limite de résolution en courant était de l'ordre de 10nA. La mesure était effectuée en superposant plusieurs enregistrements de réponse, ce qui permettait de plus d'atténuer le bruit sur la mesure.

La diffusion désigne le transport des éléments dans le matériau cible. Au niveau microscopique, dans une même cible, le matériau peut avoir différentes formes: grain, joint de grain, espace inter-grain... jusqu'aux « pores » qui constituent des zones dans lesquelles le transport est généralement assimilé à de l'effusion. Si un atome atteint un pore et re-pénètre dans un joint de grain ou un grain, quelle est la part de la diffusion et celle de l'effusion ? Où se situe la frontière entre la diffusion et l'effusion ? De même entre l'effusion et l'ionisation : si un atome se neutralise après avoir été ionisé, quelle est la part du temps qui sera attribuée au processus d'effusion et au processus d'ionisation ?

La compétition entre processus d'effusion et d'ionisation a été décrite dans les paragraphes précédents : reste la diffusion des atomes radioactifs dans la cible. Supposons que celle-ci soit formée d'un matériau homogène et isotrope. Les atomes se propagent dans la matière cible selon la loi générale de transport de Fick⁴⁰. Cette loi conduit à décrire le flux d'atomes relâché par la cible comme la superposition des flux d'atomes qui effuseraient en régime moléculaire d'un ensemble infini de réservoirs à la même pression initiale. Chaque réservoir aurait un volume et un orifice de sortie fixés par la zone de la cible à laquelle il correspond : la partie centrale de la cible correspondrait à un réservoir important muni d'un orifice de sortie réduit, c'est-à-dire que les atomes contenus sortent lentement à cause de l'épaisseur à traverser, et pendant longtemps à cause de leur nombre important. Les parties extérieures de la cible correspondraient à des réservoirs de faibles volumes munis d'orifices de sortie importants, c'est à dire peu d'atomes dans les couches en surface de la cible, qui sortent rapidement car ayant peu d'épaisseur de cible à traverser. L'évolution en temps du flux d'atomes relâchés par la cible peut donc être décrite par une somme infinie d'exponentielles. **Si l'on fait l'hypothèse que les atomes ne re-pénètrent pas dans la cible**, chaque exponentielle de relâchement peut être convoluée avec la réponse en temps de la source. La réponse en temps de transformation de l'ensemble cible-source peut alors s'exprimer sous la forme de l'Équation 4:

$$x_i(t) \Big|_{\text{sortie source}} = 8. \lambda_D . N_0 . \lambda_i . \lambda_{ieff} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{\lambda_i + \lambda_{ieff} - \lambda_D^n} \left(\frac{e^{-(\lambda_D^n + \lambda_i)t} - e^{-(\lambda_{ieff} + \lambda_i)t}}{\lambda_{ieff} - \lambda_D^n} - \frac{e^{-(\lambda_i + \lambda_{ieff} + \lambda)t} - e^{-(\lambda_{ieff} + \lambda)t}}{\lambda_{ieff} - \lambda_i - \lambda_{ieff}} \right) \quad (4)$$

où $\lambda_D = D/d^2$. λ_D est le taux de diffusion, D est le coefficient de diffusion d'atomes donnés dans le matériau (en $\text{cm}^2.\text{s}^{-1}$), et d est l'épaisseur du matériau (sous forme de feuille). $\lambda_D^n = (2n+1)^2 \pi^2 \lambda_D$ et N_0 est le nombre d'atomes dans la cible à $t=0$. Cette réponse en temps est particulièrement intéressante car la confrontation de sa forme à une mesure permet d'identifier les processus impliqués (voir § 4.9, 4.10, 4.13).

L'efficacité correspondante est égale à

^j On suppose que la diffusion des atomes est indépendante de la densité des atomes et que le matériau n'est pas modifié par la production et la présence des atomes.

$$\varepsilon_{ai} = 2 \cdot \sqrt{\frac{\lambda_D}{\lambda}} \cdot \left(\frac{1}{2} \sqrt{\frac{\lambda}{\lambda_D}} \right) \cdot \frac{\lambda_i}{(\lambda_i + \lambda_{eff} + \lambda)} \quad (\text{Équation 5})$$

Cette expression montre comment l'hypothèse faite de non pénétration des atomes dans la cible une fois que ceux-ci en sont sortis conduit l'efficacité à être le produit de l'efficacité de diffusion (terme de gauche) et de l'efficacité d'effusion ionisation. Nous verrons § 4.13 que l'ECS de SPIRAL 2 destiné à la production d'ions à partir de gaz rares ne respecte pas cette hypothèse.

Une différence notable entre cette approche et les travaux antérieurs effectués au GANIL sur la diffusion d'atomes de gaz rares dans les cibles réside dans l'échelle considérée pour les processus de diffusion et d'effusion. Les cibles étudiées étaient en graphite, c'est-à-dire une poudre compacte, rendue solide par frittage et faite de grains, de joints inter-grains et de pores de dimensions supérieure au micromètre. Dans ces travaux, le processus de diffusion était défini comme gouvernant le relâchement des atomes en dehors des grains, supposés homogènes. Le processus d'effusion gouvernait la propagation des atomes entre grains. La description mathématique de l'effusion d'atomes dans un labyrinthe d'interstices étant identique à celle de la diffusion, était-il justifié de décrire cette effusion par une exponentielle pure, propre à l'effusion dans des volumes simples ? Était-il pertinent de séparer les effets de diffusion et d'effusion dans la cible ?

Dans ce travail, j'ai choisi de définir le coefficient de diffusion comme coefficient rendant compte de la propagation des atomes dans un milieu homogène à l'échelle macroscopique, **sans séparation des processus de diffusion et d'effusion dans la cible**. Sa valeur n'est donc pas comparable avec celle extraite des travaux antérieurs. Elle présente l'avantage d'être directement utilisable par le concepteur d'ECS pour l'estimation de taux de diffusion. Cette définition a été adoptée et respectée dans l'ensemble des travaux de ce mémoire, et particulièrement au cours de l'étude de diffusion décrite au paragraphe 4.10 dans le cadre de la collaboration TARGISOL.

4.9 Comportement temporel de la transformation atome-ions dans l'ECR de SPIRAL 1.

Total efficiency of an ISOL production system based on an ECRIS associated with a carbon target: the case of SPIRAL I

P. Jardin , W. Farabolini, C. Eleon, M. Dubois, G. Gaubert, J.C. Cornell, N. Lecesne, R. Leroy, J.Y. Pacquet and M.G. Saint Laurent. Rev. Sci. Instr. **77** (2006) 03A707

Les premiers faisceaux d'ions radioactifs délivrés par l'installation SPIRAL 1 ont été produits à partir d'isotopes de gaz rares. L'ECS était muni d'une cible de carbone et d'une source ECR d'ions multi-chargés de type NANOGAN III reliées entre elles via une zone de transfert. Certaines des intensités obtenues au démarrage de son exploitation étaient plus faibles que celles obtenues sur le banc de tests SIRa, même après quelques années de

fonctionnement. Ces intensités permettaient de réaliser des expériences mais les écarts constatés méritaient une recherche d'explication.

Lors de la conception de l'ECS, la vision de son fonctionnement était la suivante : une fois sortis du matériau cible par diffusion, les atomes effusaient jusque dans la source où ils étaient ionisés. La probabilité pour que les atomes, une fois arrivés dans la source, effusent de nouveau vers la cible était négligée car l'efficacité d'ionisation de la source était considérée très proche de 100%. Si les atomes atteignaient la source, ils étaient transformés en ions et sortaient de la source. Les pertes d'atomes au travers des défauts d'étanchéité de la zone de transfert (due à la solution mécanique retenue pour l'assemblage de l'ECS) étaient négligées car leur ouverture était faible par rapport à l'ouverture entre cible et source. La transformation des atomes en ions était donc décrite comme la succession de trois processus : la diffusion des atomes en dehors de la cible, l'effusion de l'enceinte cible à la source via la zone de transfert et l'ionisation. L'expression de l'efficacité qui découlait de cette description était le produit des efficacités de diffusion, d'effusion et d'ionisation. Les premières mesures effectuées avec l'ECS ont remis en question cette description : elles ont montré que l'efficacité de transformation des atomes pouvait être bien en dessous de 100%. Les temps de transformation mesurés, plus longs qu'attendus, étaient cohérents avec les efficacités plus faibles qu'attendues. Le temps ayant une influence sur l'efficacité, modifier la répartition du temps entre processus modifiait la part de responsabilité attribuée à chaque processus dans l'efficacité totale, ainsi que les paramètres déduits de l'efficacité de chaque processus.

Les mesures ont été répétées pour tous les gaz rares de l'He au Kr. Elles consistaient de nouveau à injecter un pulse d'atomes dans la cavité cible et à mesurer le courant d'ions induits en sortie de source. Elles permettaient donc de limiter la mesure au processus d'effusion-ionisation car les atomes n'étant pas créés dans la cible ils n'avaient pas à diffuser pour en sortir. Les voies que pouvaient emprunter les atomes pour disparaître de la source étaient limitées aux quatre voies suivantes :

- Effusion au travers des défauts d'étanchéité de la zone de transfert (càd fuite avec un taux λ_{fuite})
- Effusion au travers de l'orifice de sortie de la source (λ_{eff})
- Ionisation (λ_{ion})
- Effusion-diffusion au travers des parois de l'enceinte ($\lambda_{eff.diff}$)

Cette dernière voie a été envisagée puis négligée pour la raison suivante : la perte d'atomes par diffusion au travers des parois de l'enceinte cible implique qu'arrivés à mi-épaisseur de la paroi, les atomes ont autant de chances de revenir vers l'intérieur de l'enceinte que de continuer vers l'extérieur puisque le déplacement des atomes dans la matière est aléatoire. Ces atomes ont diffusé dans la matière. S'ils ont été nombreux à emprunter ce chemin, la forme de la réponse en temps globale doit être influencée par la forme de leur relâchement, qui sera donc différente d'une exponentielle pure. Or toutes les réponses enregistrées (Figure 33) étaient très proches d'exponentielles, caractéristique du processus d'effusion-ionisation. La contribution de la diffusion dans le processus de transformation a donc été négligée.

Selon l'équation 3 du paragraphe 3.8, l'efficacité ε_{ai} de transformation devait pouvoir être simplement décrite sous la forme

$$\varepsilon_{ai} = \frac{\lambda_{ion}}{\lambda_{ion} + \lambda_{eff} + \lambda_{fuite}} \text{ (Équation 6)}$$

Cette expression permet aisément de voir que supposer une efficacité d'ionisation proche de 100% conduisait à minorer les taux d'effusion et de fuite. A l'inverse, supposer une efficacité d'ionisation plus faible conduisait à des taux de fuite et d'effusion relativement plus importants.

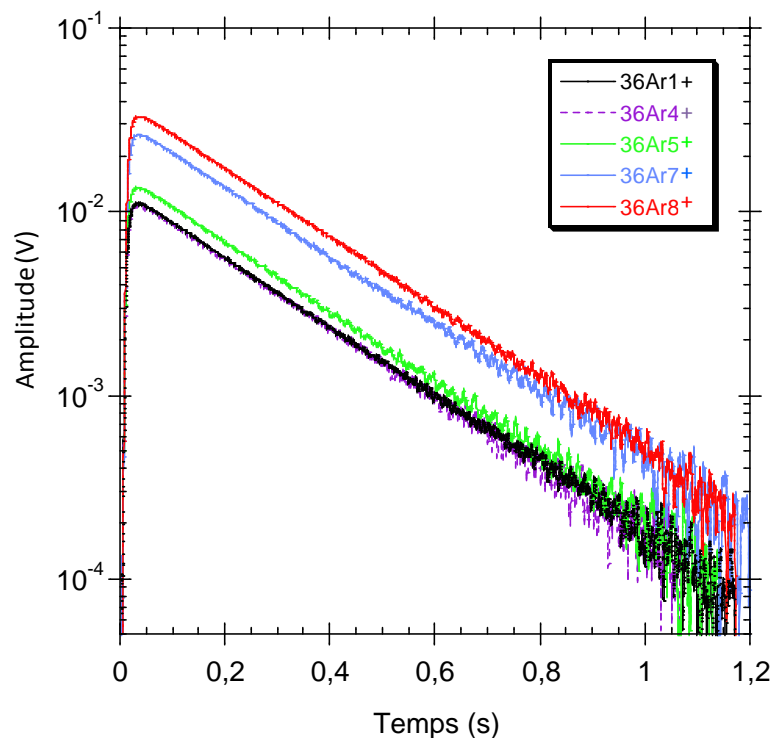


Figure 33 : Exemple du courant d'ions (converti en volts au travers de la résistance de la CF) enregistré en fonction du temps en sortie de l'ECS de SPIRAL 1 suite à l'injection d'un pulse d'argon. Durée du pulse 1.3ms.

Une des premières améliorations qui a été apportée à l'ECS a donc consisté à améliorer l'étanchéité de l'enceinte cible, ce qui a conduit à un gain d'efficacité de production de 40% pour l' ^6He .

Dans le cas de l'ECS de SPIRAL 1, cela a donc servi à mettre en évidence qu'une baignoire fuit moins lorsque les fuites sont bouchées. Cela devient évident pour un système de production d'ions radioactifs lorsque « l'analogie » est établie...

En parallèle de ce travail, une étude destinée à caractériser la diffusion d'atomes de gaz rares dans le graphite via une nouvelle approche avait été entreprise (voir paragraphe 4.10). En utilisant les résultats de cette étude pour le graphite de la cible de SPIRAL 1, et l'expression (5) de l'efficacité, le calcul des taux de production d'ions radioactifs en sortie de l'ECS de SPIRAL 1 a été refait.

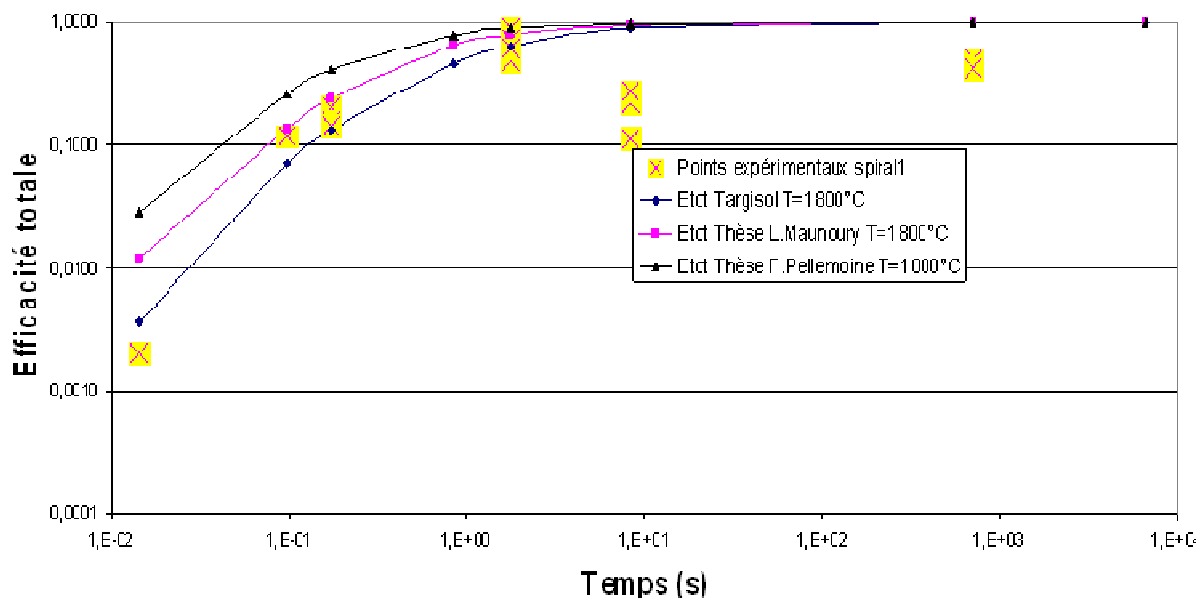


Figure 34 : Efficacités totales de transformation atomes-ions calculées pour les isotopes ^{31}Ar ($T_{1/2}=15\text{ms}$), ^{32}Ar ($T_{1/2}=98\text{ms}$), ^{33}Ar ($T_{1/2}=173\text{ms}$), ^{35}Ar ($T_{1/2}=1,8\text{s}$), ^{46}Ar ($T_{1/2}=8,4\text{s}$) et ^{44}Ar ($T_{1/2}=712\text{s}$) en fonction de leur durée de demi-vie. Le calcul a été fait en utilisant la présente description ainsi que celles données dans les thèses de L. Maunoury³³ et F. Pellemoine⁴¹. Les carrés jaunes correspondent aux valeurs mesurées.

Le résultat de ce calcul a prédit une diminution de l'efficacité pour les isotopes de courte durée de vie plus rapide que celle déduite de l'approche initiale qui considérait que l'efficacité d'ionisation de la source était de 100%. Elle expliquait en partie la raison pour laquelle la production de ^{31}Ar ($T_{1/2} = 15\text{ms}$) était particulièrement difficile : si l'efficacité d'effusion-ionisation était de 80% pour un isotope stable comme ^{36}Ar , le temps de transformation correspondant à cette efficacité conduisait à une diminution d'efficacité d'un facteur 20 dans le cas de ^{31}Ar .

Ces résultats ont entre autres permis d'orienter la conception d'un ECS dit « amélioré » destiné à SPIRAL 1 et décrit au paragraphe 3.16.

4.10 Réponse en temps de la diffusion dans une cible de graphite : collaboration TARGISOL.

Etude de sources d'ions originales destinées à la production d'ions radioactifs

Cyrille ELEON, 2004-2007 Thèse de doctorat, chapitre II

Measurement of the Ar diffusion coefficient in graphite at high temperature by the ISOL method

C. Eléon, P. Jardin, J.C. Thomas, M.G. Saint-Laurent, C. Huet-Equilbec, R. Alvès-Condé, J.C. Angélique, D. Boilley, J. Cornell, M. Dubois, H. Franberg, G. Gaubert, B. Jacquot, U. Köster, R. Leroy, L. Maunoury, N. Orr, J.Y. Pacquet, F. Pellemoine, C. Stodel, M. Turrión. *Nuc. Instr. and Meth. B* **266** (2008) 4284-4288

La contribution du GANIL à la collaboration GANISOL a consisté à développer le dispositif décrit au paragraphe 3.8 et à l'utiliser pour déterminer le coefficient de diffusion d'atomes d' ^{35}Ar dans les différents types de matériaux cibles, dont plusieurs étaient du graphite de différentes tailles de grain. L'un de ces graphites est actuellement utilisé pour réaliser les cibles des ECS de SPIRAL 1.

Pour réaliser le dispositif, une source d'ions mono-chargés a été couplée à un distributeur de cibles qui pouvaient être insérées chacune à leur tour dans un volume en regard direct du volume d'une source ECR. La source avait été préalablement caractérisée en efficacité et en temps de transformation. Les cibles, une fois insérées, étaient portées à haute température. Un faisceau primaire d' ^{35}Ar était implanté dans la cible. Il était délivré soit en continu, soit haché en forme de créneaux. Ces deux modes d'irradiation entraînent des méthodes d'extraction du coefficient de diffusion différentes :

- Irradiation continue : La mesure du rapport entre nombre de noyaux d' ^{35}Ar implantés et nombre d'ions $^{35}\text{Ar}^+$ en sortie de l'ECS permet de déterminer l'efficacité de transformation totale. Si l'efficacité d'effusion-ionisation a été mesurée préalablement avec des atomes stables, il est possible de la déterminer dans le cas d'atomes radioactifs puis de la soustraire de l'efficacité totale pour obtenir l'efficacité de diffusion (expression 5). Le taux de diffusion est alors extrait par inversion de l'expression de l'efficacité de diffusion.
- Irradiation en créneaux : L'évolution au cours du temps du courant d' $^{35}\text{Ar}^+$ en sortie d'ECS est mesurée à partir de l'instant de présence ou de disparition du faisceau sur la cible (les deux sont possibles). Si les taux $\lambda_{eff}, \lambda_i, \lambda_{ieff}$ caractéristiques de l'effusion-ionisation de la source ont été extraits préalablement d'une mesure de temps de transformation effectuée avec des atomes stables, il est possible d'ajuster l'expression (4) à la réponse mesurée avec des atomes radioactifs. Le seul paramètre d'ajustement de la forme de la réponse est le taux de diffusion λ_D .

Par les deux méthodes, le coefficient de diffusion peut être extrait relativement simplement. Une fois le taux de diffusion extrait, le coefficient D de diffusion macroscopique peut être déduit du taux de diffusion via la relation $\lambda_D = D/d^2$ (où d est l'épaisseur des lamelles de la cible). La mesure du temps de réponse doit cependant être privilégiée car compte tenu de la relation qui lie l'efficacité de diffusion au coefficient de diffusion (voir Figure 35), l'erreur qu'elle entraîne sur la détermination du taux de diffusion est plus faible.

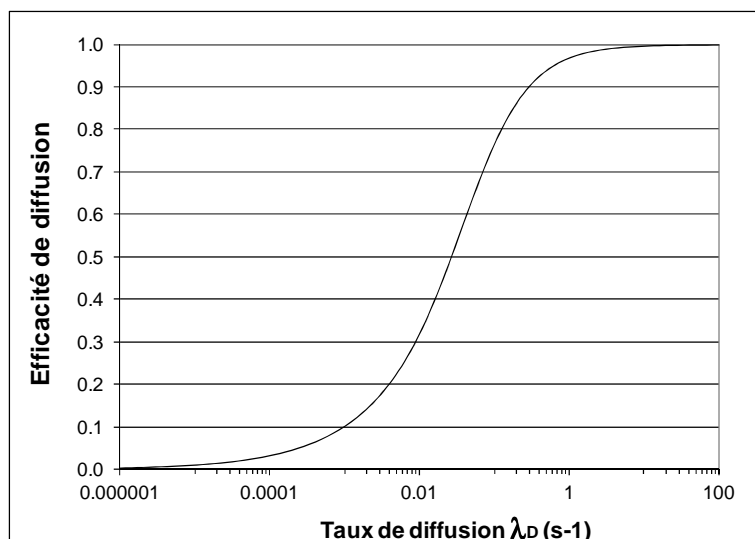


Figure 35 : Forme de la relation qui lie efficacité de diffusion et taux de diffusion λ_D . Cas de la diffusion d'atomes d' ^{35}Ar en dehors d'une feuille en fonction du taux de diffusion.

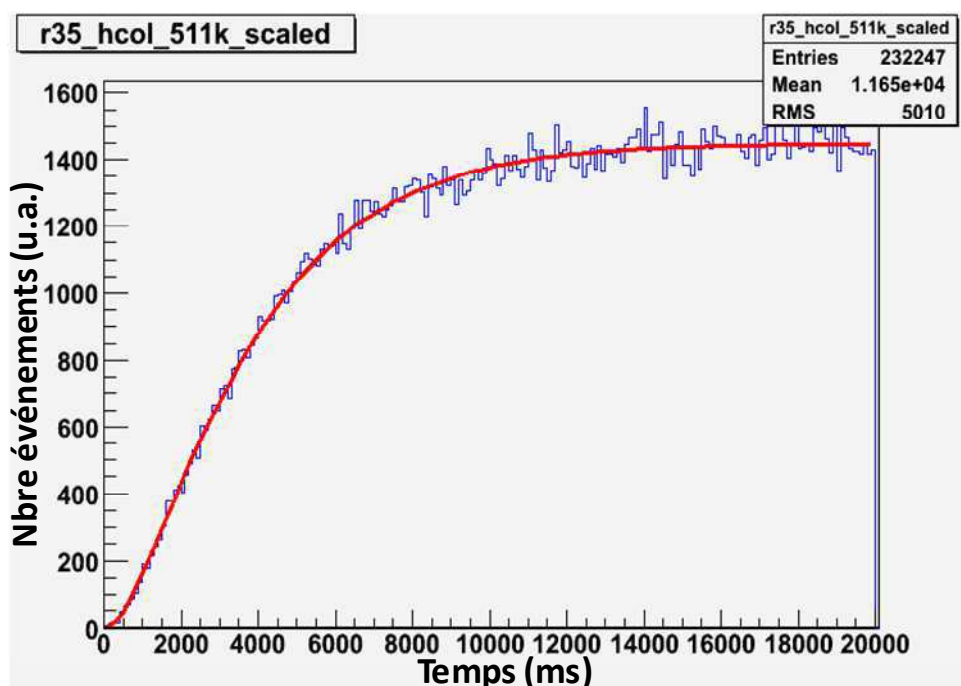


Figure 36 : Figure extraite de la thèse de C. Eléon. Fit de la réponse de l'ECS utilisé pour l'expérience TARGISOL. Exemple destiné à permettre au lecteur d'apprécier la qualité de l'ajustement entre une mesure et l'expression analytique fait avec comme seuls paramètres libres le taux de diffusion et l'amplitude. L'intensité du faisceau primaire d' ^{35}Ar était en forme de créneaux (20 s sur cible, 30 s sans faisceau). Sur cette figure est présentée la réponse avec faisceau sur cible. Cible en graphite de taille de grain $1\mu\text{m}$, température de 1500°C , efficacité d'ionisation de la source de 65%.

Les mesures de temps et d'efficacités de transformation ont été effectuées pour des cibles de graphite de différentes tailles de grains ($1\mu\text{m}$, $4\mu\text{m}$ et $16\mu\text{m}$) et à différentes températures (900°C , 1200°C , 1500°C et 1800°C). Une expression dérivée de l'expression 4

a pu être ajustée avec un très bon accord sur les réponses en temps enregistrées (voir exemple Figure 36). Le coefficient de diffusion qui a été extrait des différentes mesures a confirmé que le graphite composé de grains de $1\text{ }\mu\text{m}$ est celui qui permet d'obtenir la meilleure diffusion des atomes d'Ar en dehors de la cible. Le coefficient de diffusion de ce graphite porté à 1800°C a été trouvé égal à $9.10^{-3}\text{ cm}^2/\text{s}$. Cette valeur a été utilisée pour recalculer l'efficacité totale de l'ECS de SPIRAL 1 (paragraphe précédent, 4.9).

4.11 Temps du processus d'augmentation de charge dans l'ECS NanoNaKE.

Conversion $1+ \rightarrow N+$ directe d'ions alcalins dans le système NanoNaKE

Alain MERY, 2008 -2009, Post-doctorat

La technique de « charge breeding » présentée au paragraphe 3.13 est destinée à la production d'ions radioactifs alcalins multi-chargés. Elle associe un ECS de type MonoNaKE qui délivre des ions monochargés à une source d'ions multichargés de type NanoGAN via une ligne de transport électrostatique. Les résultats obtenus par C. Eléon montraient que le temps de transformation d'atomes en ions dans l'ECS MonoNaKE était de l'ordre de la seconde. Une fois produits, les ions $1+$ doivent être transformés en ions multi-chargés dans un temps aussi court que possible au regard de leur durée de vie.

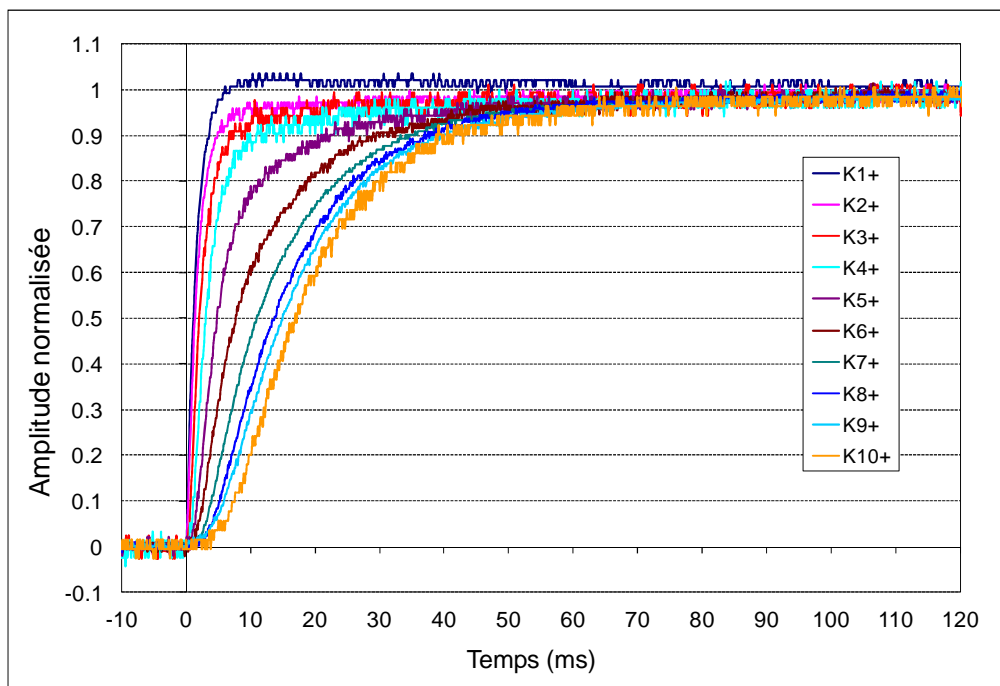


Figure 37 : Evolution en fonction du temps de la conversion des ions K^+ en ions K^{N+} , $N \in (1; 10)$ dans la source NanoNaKE suite à l'injection en échelon d'un courant d'ions K^+ à $t=0$.

Le temps de transformation dans la source Nanogan III n'avait jamais été mesuré pour des atomes condensables. Il ne l'avait été que pour les gaz rares (§4.9) et les résultats montraient un temps de l'ordre de la centaine de milliseconde, principalement du à la

possibilité qu'ont les atomes de gaz rares d'effuser jusqu'à être ionisés ou trouver la sortie. Dans le cas d'ions condensables, la voie de perte correspondant à la condensation des atomes est très importante comparée aux voies d'ionisation et d'effusion. L'efficacité est donc plus faible (voir Equation 6) et le temps de transformation est plus court. Pour la transformation des ions K^+ en ions K^{N+} (courant d'ions K^+ injectés à $t=0$ sous forme d'échelon), avec $N \in (1; 10)$, le temps de transformation à 90% de l'amplitude à l'équilibre est en moyenne d'environ 5 ms par état de charge. Ces valeurs ne diminueront donc que très peu l'efficacité déjà limitée par le temps de réponse de l'ECS MonoNaKE.

Ces temps de transformation $1+ \rightarrow N+$ sont plus courts que ceux observés avec l'amplificateur de charges « Phoenix Booster » développé au LPSC Grenoble (environ 10 ms par état de charge), mais les efficacités sont aussi plus faibles. Dans le cadre de l'upgrade du dispositif SPIRAL 1, destiné à élargir la palette de faisceau et à améliorer les performances, le choix entre le système $1+/N+$ direct (NanoNaKE) et le système avec séparateur de masse (ECS+séparateur+ Phoenix Booster par exemple) devra prendre en compte ces différents aspects pour optimiser le courant d'ions radioactifs disponible pour la physique.

La dépendance entre l'efficacité et le temps de réponse a aussi été observée dans le cas de la conversion des ions K^+ en ions K^{7+} (Figure 38). En utilisant comme gaz support de l'oxygène, l'efficacité était de 0.32% et le temps de réponse était de 19 ms, et en utilisant comme gaz support de l'He elle était de 0.39% et le temps de réponse de 11 ms.

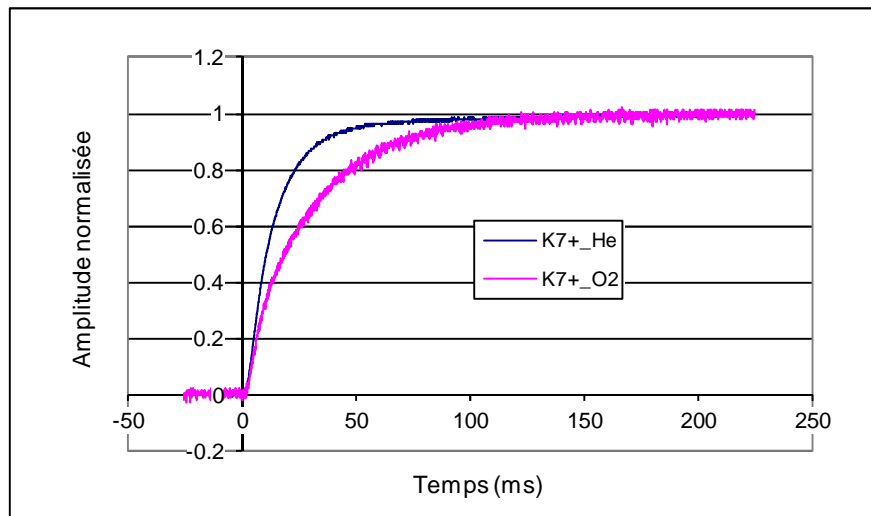


Figure 38: Evolution en fonction du temps de la conversion des ions K^+ en ions K^{7+} dans la source NanoNaKE suite à l'injection en échelon d'un courant d'ions K^+ à $t=0$. La réponse a été enregistrée pour deux gaz supports différents

4.12 ECS ECR pour SPIRAL 2.

Le groupe projet de SPIRAL 2 a confié la responsabilité du développement de deux sources d'ions au groupe production d'ions du GANIL : La source ECR destinée à

l'ionisation d'isotopes de gaz rares, et la source à ionisation de surface destinée à l'ionisation d'isotopes d'alcalins. Le but du travail présenté ici était de déterminer pour chacune d'elles le temps d'effusion-ionisation et consécutivement une valeur de la limite supérieure de l'efficacité de transformation atomes-ions de l'ECS pour différents isotopes radioactifs. Cette efficacité sera ultérieurement associée à l'efficacité de diffusion des atomes en dehors de la cible d'UCx dont l'étude a été confiée à des laboratoires travaillant en collaboration avec le projet SPIRAL 2. Dans le cadre de ce travail, la cible utilisée était en graphite et sa géométrie était identique à la future cible en UCx

La première étude a porté sur le temps de transformation des atomes en ions dans l'ECS ECR (voir dispositif § 3.11). Le temps d'effusion-ionisation des atomes de gaz rares dans l'ECS et leur temps d'effusion au travers de la cible en ont été extraits (§ 4.13). Ces résultats ont ensuite servi à estimer l'efficacité d'effusion-ionisation d'éléments alcalins dans l'ECS SIS (§3.15). Trois étapes ont été nécessaires :

- Le temps de vol des atomes alcalins dans la cible a été déduit de celui d'atomes de gaz rares, corrigé de la racine du rapport des masses.
- Le nombre de contacts des atomes alcalins avec les parois de la cible a été calculé à l'aide d'un code Monté-Carlo (RIBO) simulant les trajectoires des atomes dans la cible.
- Les temps de résidence des alcalins ont été déduits des mesures effectuées à l'aide du dispositif SISTHE, construit dans ce but (descriptif technique au § 3.20, mesures § 4.16)

La synthèse est présentée au § 4.17.

4.13 Temps de transformation et efficacité de l'ECS ECR pour SPIRAL 2.

Développement de faisceaux d'ions radioactifs pour le projet SPIRAL 2

A. Pichard, 2007-2010, Thèse de doctorat, chapitre 3

Des tests de réponse en temps ont été menés avec l'ECS ECR de SPIRAL 2 destiné à la production d'ions radioactifs à partir d'isotopes de gaz rares (dispositif paragraphe 3.11). Les deux principaux éléments d'intérêt étaient dans un premier temps le Kr et le Xe, majoritairement produits lors de la fission de l'uranium. Le but était de pouvoir séparer la contribution en temps de l'effusion dans la cible de la contribution d'effusion-ionisation dans la source, et d'en déduire l'effet qu'aurait la durée de vie des isotopes radioactifs sur l'efficacité de transformation globale de l'ECS.

Deux vannes de gaz rapides alimentées par un mélange de gaz (He, Ne, Ar, Kr et Xe) ont été raccordées à l'ECS ; l'une directement à l'arrière de la source ECR (Figure 39) et l'autre à l'arrière de la cible, face à des pastilles de graphite de façon à ce que le gaz injecté ne puisse pas traverser directement la cible au travers d'un interstice entre piles cylindriques de pastilles (19 piles de 80 pastilles chacune, diamètre 15 mm, épaisseur 1 mm). Les mesures de temps ont été faites pour tous les gaz ci-dessus et pour différentes températures de cible, à savoir 300K, 1000 K, 1400 K et 1800 K.

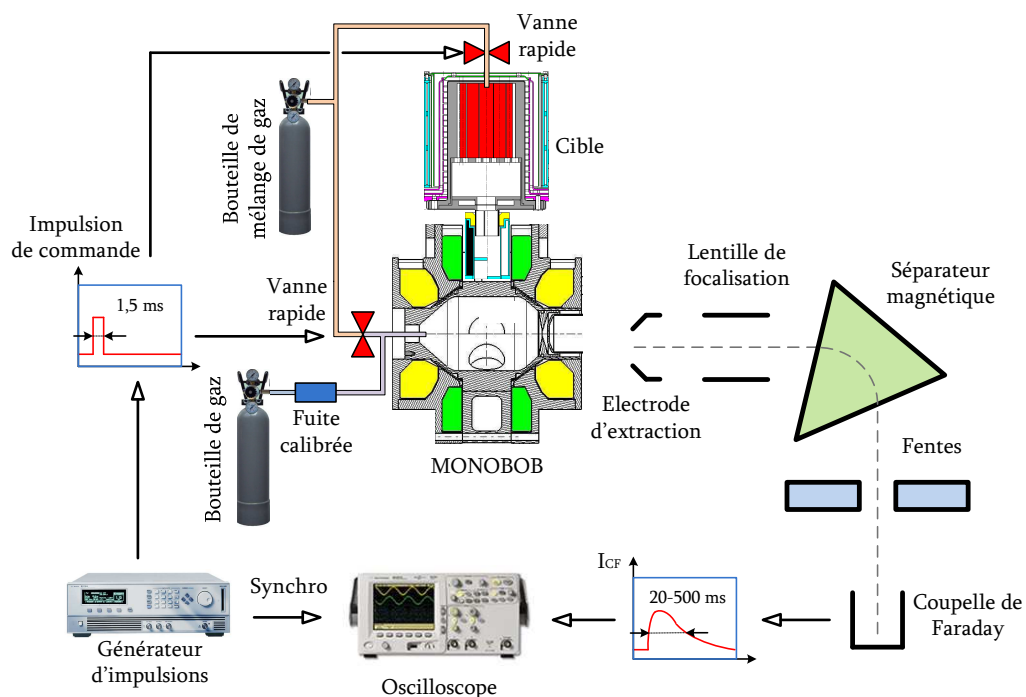


Figure 39 : dessin de principe des mesures de temps de transformation des atomes en ions dans l'ECS ECR de SPIRAL 2.

Temps de transformation au travers de l'ECS

Les temps de transformation via une injection du gaz dans la source et dans la cible sont donnés respectivement Figure 40 et Figure 41 avec une même échelle de temps.

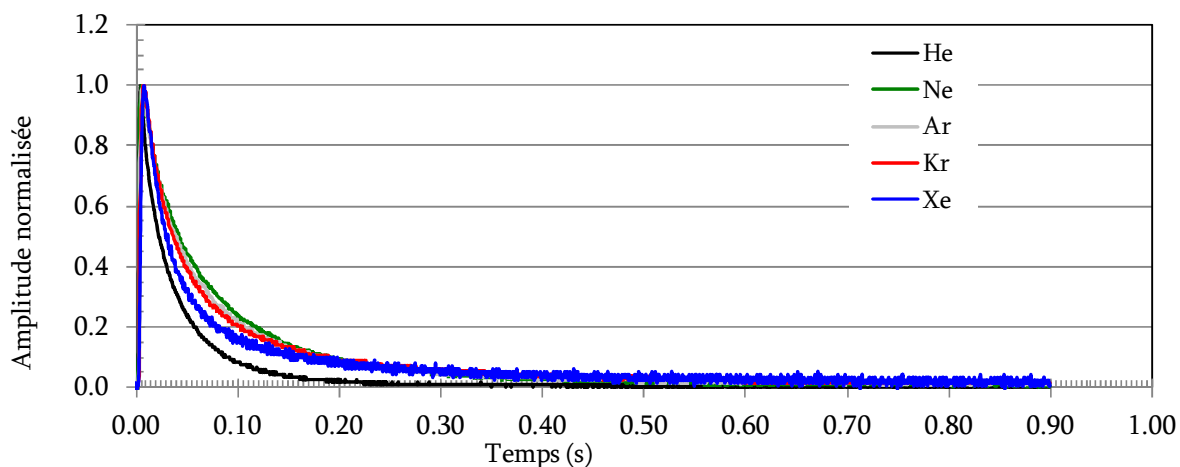


Figure 40 : Temps de transformation de gaz rares dans l'ECS de SPIRAL 2 suite à l'injection d'un pulse de gaz dans la source. Cible à 1400 K.

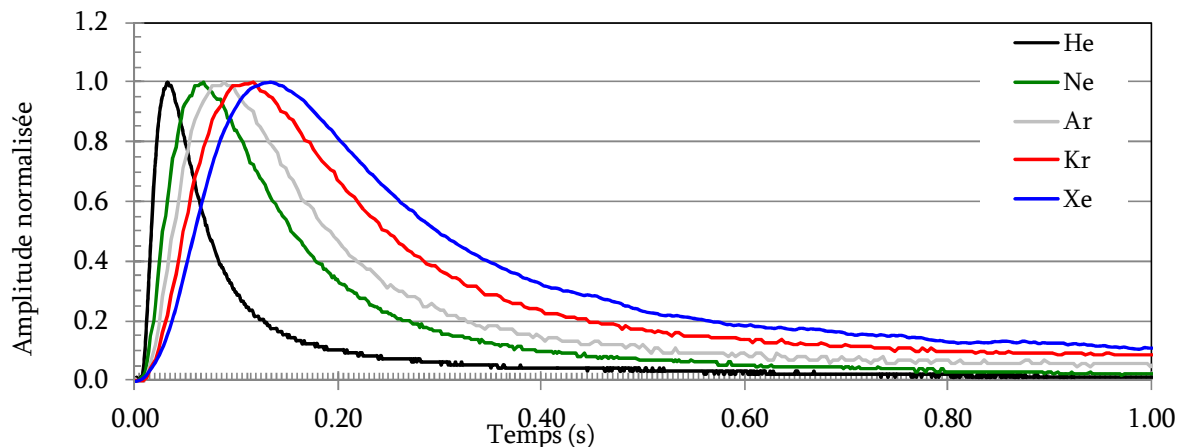


Figure 41 : Temps de transformation de gaz rares dans l'ECS de SPIRAL 2 suite à l'injection d'un pulse de gaz à l'arrière de la cible. Cible à 1400 K.

On constate que le temps de transformation des atomes en ions dans la source est proche de 50 ms (à 50% de l'amplitude) et qu'il est de 3 à 6 fois plus court que le temps correspondant à l'injection dans la cible. L'écart est évidemment attribué au temps d'effusion des atomes au travers de la cible. Les temps de réponse les plus longs correspondent aux gaz les plus lourds.

4.14 Ce que l'on peut déduire de la forme des réponses enregistrées

La forme des réponses enregistrées ne peut pas être correctement reproduite par l'utilisation de l'expression (1) qui rend compte du temps d'effusion-ionisation dans un volume ouvert via une simple exponentielle décroissante. La différence principale de cet ECS par rapport aux exemples précédents est la complexité géométrique de la cible. Compte tenu de l'ouverture importante entre chambre source et le volume cible, une part des atomes injectés dans la source atteint le volume cible. Ils pénètrent dans le labyrinthe que constitue la cible puis en ressortent, ce qui conduit à une évolution de la réponse qui n'est plus exponentielle, alors que celle de la source seule (non couplée à la cible) l'était. La Figure 42 compare l'allure de la réponse enregistrée à l'allure d'une réponse gouvernée par l'effusion-ionisation et à l'allure d'une réponse gouvernée par la diffusion. Les amplitudes ont été normalisées à l'origine des temps et les courbes théoriques de diffusion et d'effusion ont été calculées pour que leurs pentes à l'origine et leur amplitude soient proches de celle de la réponse expérimentale. Cette dernière se trouve entre les deux courbes théoriques, plus rapide que la diffusion aux temps courts, et plus lente que l'effusion aux temps longs.

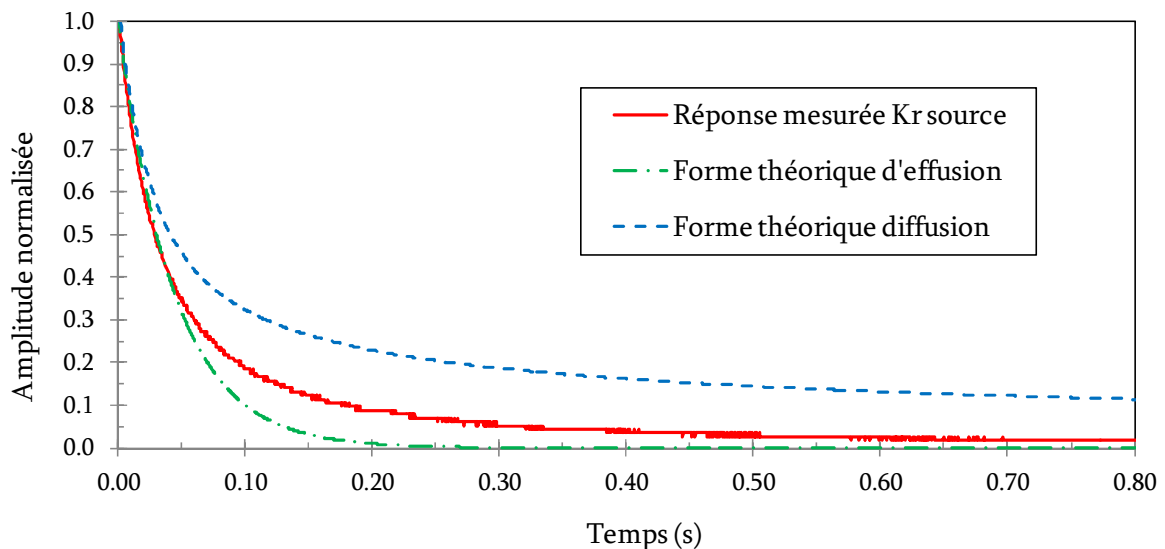


Figure 42 : Temps de transformation du Kr dans l'ECS de SPIRAL 2 suite à l'injection d'un pulse de gaz à l'arrière de la cible. Cible à 1400 K. La ligne bleue représente la forme du relâchement des atomes par diffusion hors d'une cible et la courbe verte la forme la forme du relâchement des atomes par effusion hors d'un volume ouvert en supposant une même amplitude à $t=0$.

Cette observation a souvent été interprétée comme le résultat d'une superposition du processus de diffusion des atomes dans le matériau cible et du processus d'effusion en dehors du matériau. Une fois évaluée l'importance de chaque processus, les paramètres de diffusion propre au matériau et à l'atome diffusant étaient extraits (coefficients d'Arrhénius).

Pour comparaison, la géométrie interne de l'ECS de SPIRAL 1 (Figure 5) est plus simple (cible « monobloc »). Le temps de réponse suite à l'injection d'un pulse d'atomes entre cible et source y a aussi été mesuré. Aucune déviation par rapport à une forme de simple exponentielle n'a été observée, même à haute température de cible, alors que le matériau est le même. Le coefficient de diffusion du graphite augmente pourtant avec la température, donc une quantité d'atomes plus importante re-pénètre dans le graphite, mais cette quantité est insuffisante pour modifier la forme de la réponse. Comment expliquer cette différence ?

L'explication proposée repose sur la géométrie de la cible de SPIRAL 2 (plus de 1000 pastilles) dont la complexité engendre une forme de réponse qui se rapproche de celle de la diffusion.

Cette proposition a une conséquence importante : si cette géométrie engendre une forme de réponse dont la description mathématique se rapproche de celle utilisée pour la diffusion, la complexité de la structure microscopique du graphite, beaucoup plus importante que celle de géométrie macroscopique, ne peut qu'engendrer une forme de réponse habituellement attribuée à un processus de diffusion. Par conséquent, le processus de diffusion dans les grains du graphite ne peut pas être séparé du processus d'effusion entre les grains, et donc le choix fait au paragraphe 4.8 de ne pas séparer ces processus dans le graphite est justifié.

Le volume de l'ECS de SPIRAL 2 ne peut plus être considéré comme un volume ouvert. Le degré de complexité de sa géométrie a passé un seuil au-delà duquel il n'est plus possible de rendre compte de l'effusion à l'aide d'une simple exponentielle, alors que l'ECS de SPIRAL 1 le permettait. Ce constat suggère qu'une étude de la dépendance de la forme de la réponse en fonction de la complexité géométrique aiderait probablement à la conception des ECS, et permettrait d'apprécier une géométrie avant d'avoir recours à une simulation d'effusion à l'aide d'un code Monté-Carlo.

Une conséquence supplémentaire de l'observation faite avec l'ECS de SPIRAL 1 sur la faible re-pénétration des atomes dans la cible conforte l'hypothèse faite au paragraphe 4.8 que les atomes ne re-pénètrent pas dans la cible de graphite une fois sortis. Cette hypothèse a permis de décrire le processus de relâchement par la cible et le processus d'effusion-ionisation comme deux processus consécutifs. Sans cette hypothèse, la description analytique du fonctionnement d'un ECS aurait été beaucoup plus difficile.

4.15 Evaluation de l'efficacité d'effusion-ionisation des isotopes radioactifs de gaz dans l'ECS ECR

A partir de la réponse en temps d'effusion au travers de la cible mesurée en utilisant des atomes stables, la réponse pour les isotopes radioactifs du même élément a été déduite en la multipliant par le terme de décroissance radioactive $e^{-\lambda.t}$. Par intégration sur le temps de la réponse entre $t = 0$ et $l'infini$, l'efficacité d'effusion correspondante a été calculée pour différents isotopes de gaz rares, de l'He au Xe. Le résultat est donné Figure 43 et Figure 44 uniquement pour les isotopes du Kr et du Xe, ceux-ci figurant parmi les premiers objectifs du projet SPIRAL 2 [^{94}Kr (212 ms), ^{140}Xe (13.6 s), ^{142}Xe (1.23 s)].

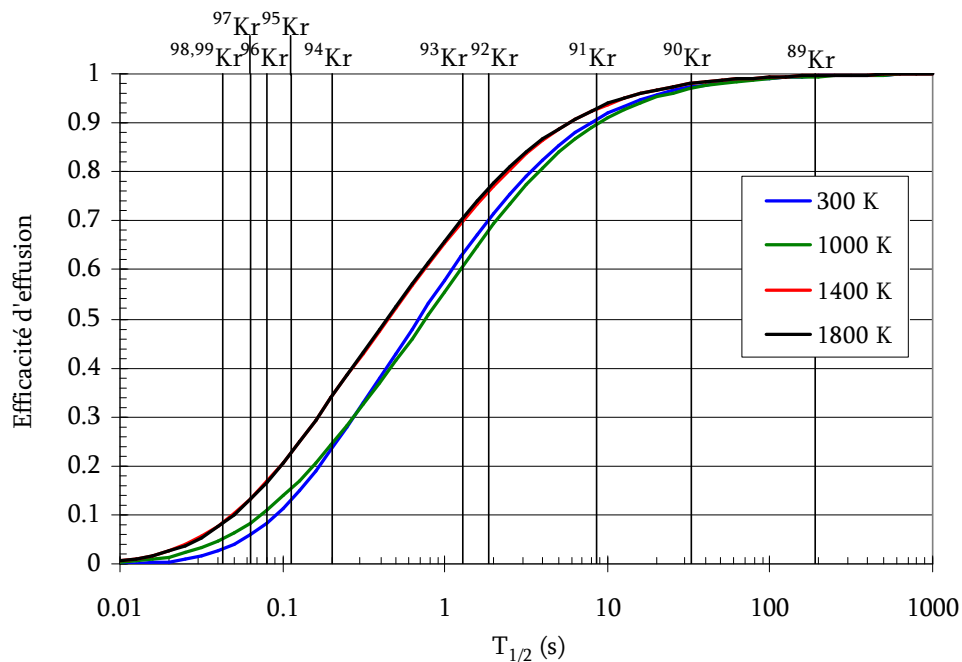


Figure 43 : Exemple d'évolution de l'efficacité d'effusion au travers de la cible en fonction de la durée de vie des isotopes. Cas du Kr à différentes températures de la cible.

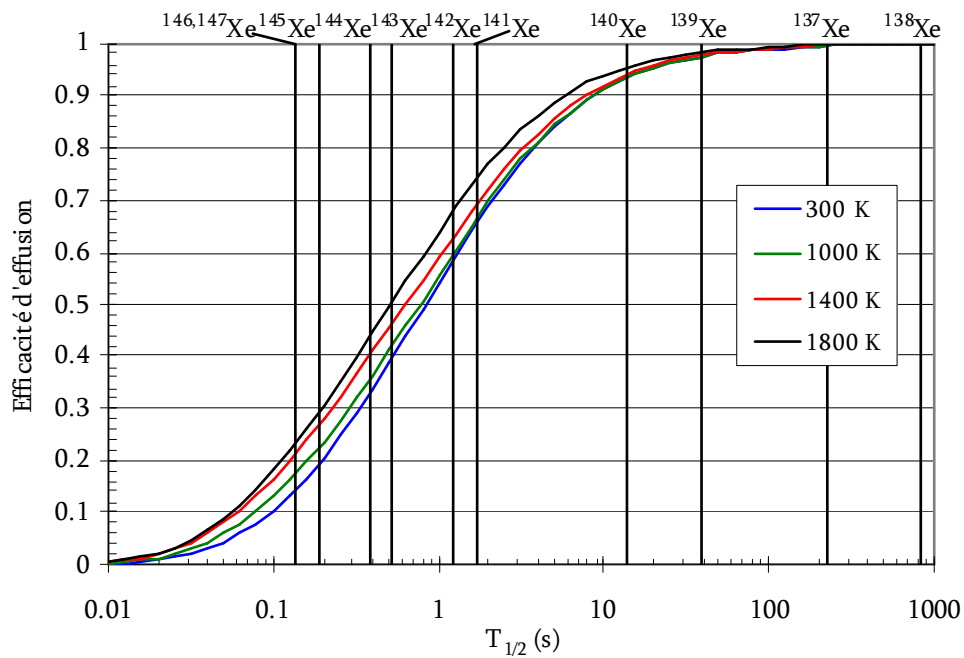


Figure 44 : Exemple d'évolution de l'efficacité d'effusion au travers de la cible en fonction de la durée de vie des isotopes. Cas du Xe à différentes températures de la cible.

Effet de la température sur le temps de réponse de la source

La vitesse d'effusion des atomes variant avec la racine de leur température, le temps d'effusion diminue dans la même proportion (facteur $\sqrt{6}$ entre 300 K et 1800 K). On s'attendait donc à observer une diminution du temps de réponse lorsque les atomes étaient injectés directement dans la source puisqu'une partie des atomes passe dans la cible avant d'être ionisée. Le temps de réponse de la source en fonction de la température de la cible (Figure 45) nous montre que la température de la cible n'influence que très peu le temps de réponse. Le coefficient de diffusion, donc le taux de pénétration des atomes augmentent pourtant avec la température, mais le temps de réponse ne change pas. Ce comportement rappelle celui observé avec l'ECS de SPIRAL 1. Son origine est peut être la même (faible pénétration des atomes dans le graphite) mais les effets de diffusion et d'effusion étant plus difficile à séparer dans cet ECS, il est aussi plus difficile de conclure sur l'origine de cette observation. Elle reste cependant un résultat très intéressant car elle montre que le processus d'effusion-ionisation dans la source est indépendant de la température.

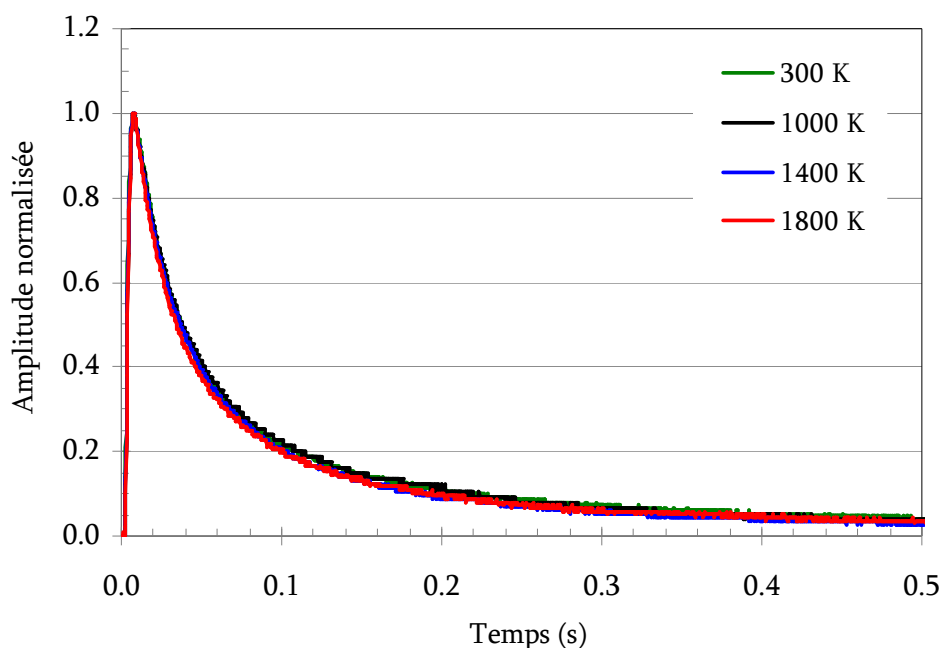


Figure 45 : Réponses en temps à une impulsion de krypton injectée dans la source pour différentes températures de la cible.

Le temps de réponse par injection de gaz au travers de la cible en fonction de la température a été conforme à l'attente : il a diminué lorsque la température a augmenté, dans un facteur inférieur à la racine de la température puisqu'une partie de la réponse est régie par le processus d'ionisation qui est très faiblement dépendant de la température.

4.16 Système d'étude des sources à ionisation de surface : le dispositif SISTHE

Le but du dispositif SISTHE (§3.14) est d'étudier le principe de paroi chaude couramment utilisé pour ioniser les atomes d'alcalins, et si possible d'optimiser sa mise en œuvre pour la production d'ions alcalins radioactifs dans le cadre des installations SPIRAL 1 et SPIRAL 2.

Pour rappel, le dispositif SISTHE est fait d'un canon qui délivre un faisceau pulsé d'ions, d'une cavité en graphite dont la température est réglable, et d'un tube ioniseur soit en graphite, soit en rhénium, dont la température et le champ électrique peuvent être ajustés et qui est raccordé à cette cavité. Les ions délivrés par le canon pénètrent dans la cavité et y sont stoppés. Sous l'effet de la température, ils volent entre parois, entrent en contact avec les parois et répètent ce processus jusqu'à parvenir soit à l'orifice d'entrée du faisceau d'ions, auquel cas ils sont perdus, soit à l'orifice d'entrée du tube ioniseur, auquel cas ils ont une chance de le traverser et d'en sortir à l'extrémité opposée sous forme d'ions.

Deux résultats sont visés : celui du « temps de réponse de la source » qui sépare l'instant d'injection des ions dans le tube de l'instant de sortie des ions du tube, et celui du temps de résidence^k des atomes alcalins sur les parois de graphite de la cavité.

Le temps qui sépare l'instant d'injection d'un pulse d'ions dans la cavité de l'instant de sortie des ions du tube ioniseur résulte de la convolution de deux réponses en temps : celui de la cavité et celui du tube ioniseur. Notre désir était d'extraire de la mesure de cette réponse des informations sur le temps de réponse de la cavité et du tube ioniseur. Le tube ioniseur avait été conçu dans le but de minimiser son temps de réponse. Si ce but était atteint, le temps de réponse du tube pourrait être négligé dans le temps de réponse global cavité+tube, qui ne correspondrait plus alors qu'au temps de réponse de la cavité.

Le temps de réponse du tube seul a été mesuré après retrait de la cavité et en injectant un pulse d'ions du canon directement dans le tube. Un exemple de réponse en temps du tube est donné Figure 46 dans le cas d'ions Rb^+ à différentes puissances de chauffage du tube^l. L'augmentation de la puissance a deux effets : l'amplitude du signal augmente et le temps de réponse diminue car le temps de résidence diminue et le champ électrique dans le tube augmente (1.4V/cm à 800 W).

Ces mesures ont été effectuées de façon systématique pour les atomes de Cs, Rb, K et Na dans un tube de graphite à des températures comprises entre 1560 K et 2010 K (Figure 47).

^k Le comportement des atomes en surface d'un matériau tel que le graphite pose la question du sens à donner au terme de « collage » sur une paroi. Le temps passé par un atome sur une paroi de graphite, et de façon plus générale sur toute paroi « irrégulière », n'implique probablement que rarement un collage unique entre deux vols entre parois, mais plutôt une succession de courts vols entre irrégularités microscopiques du matériau et de collages à une profondeur qui dépend de sa porosité. Pour marquer la différence entre la notion idéale de temps de collage unique et le sens de nos résultats, le terme de temps de collage a été remplacé par « temps de résidence ».

^l Notre géométrie expérimentale conduit à supposer que les ions sont stoppés de façon relativement uniforme dans le tube. Une mesure rigoureuse aurait du permettre de faire apparaître les ions en entrée du tube, et pas sur toute sa longueur. Une simulation Monté Carlo a montré que ces deux répartitions à l'intérieur du ioniseur conduisaient à des temps de réponse proches.

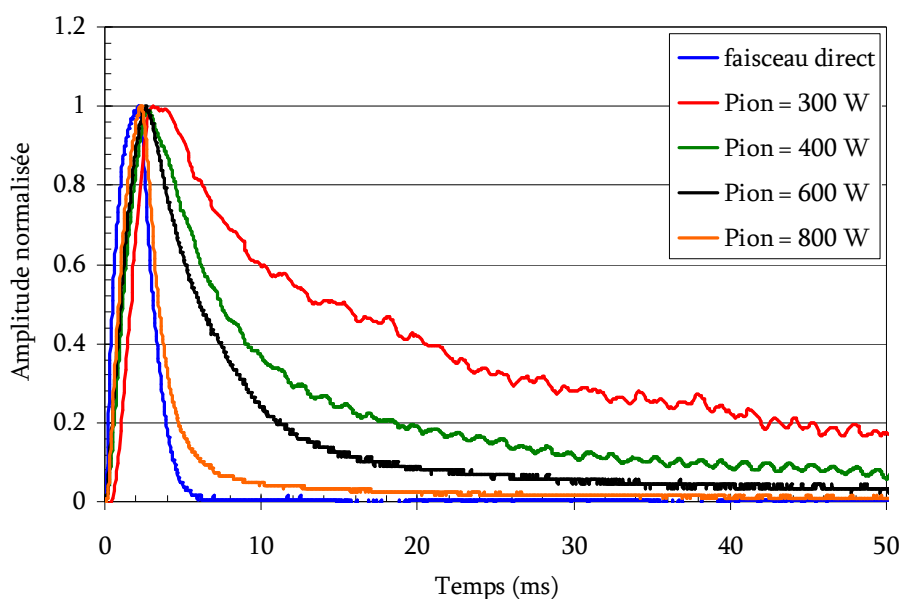


Figure 46 : Exemples de réponses en temps d'ions Rb^+ en sortie du tube ioniseur en carbone pour différentes puissances de chauffage du ioniseur. La forme de l'impulsion du faisceau direct est aussi présentée. L'amplitude des impulsions a été normalisée afin de mettre en évidence l'évolution du temps de réponse. Une amplitude plus importante du bruit sur un enregistrement indique une amplitude absolue plus faible.

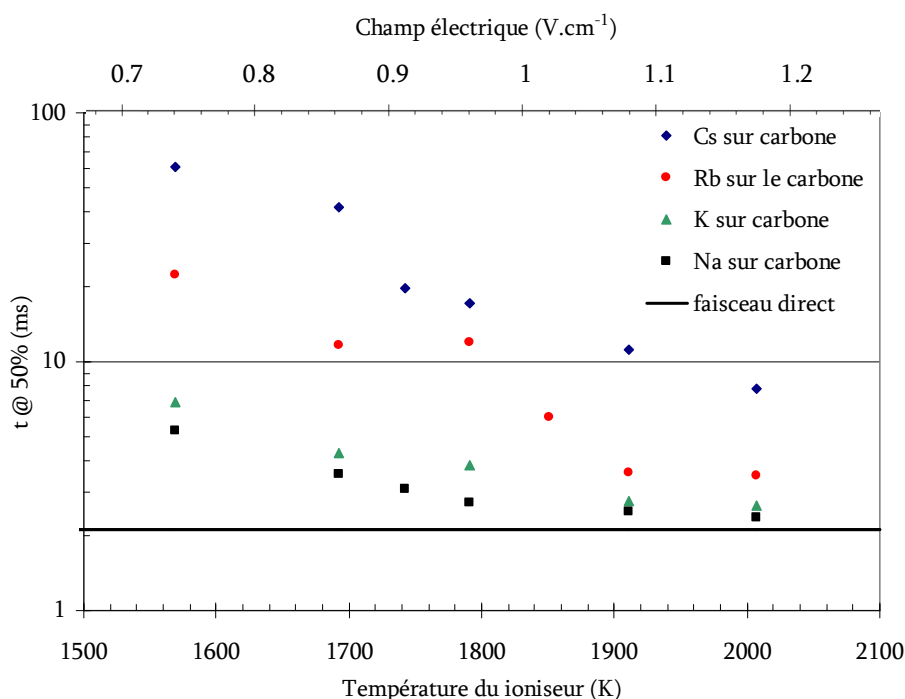


Figure 47 : Graphique présentant l'évolution du temps de réponse (à 50% de l'intégrale du signal) du tube ioniseur à l'injection d'un pulse d'ions en fonction de sa température. Le champ électrique correspondant à la température est placé en abscisse en haut de la figure. La ligne placée à environ 2 ms représente la largeur en temps du faisceau direct.

On observe que les temps de réponses (à 50% de l'intégrale de chaque réponse) sont tous inférieurs à 10 ms pour une température supérieure à 1950 K. Puisque la réponse en

temps à l'injection d'un pulse d'ions de la cavité associée à l'ioniseur (voir Figure 48) est dans tous les cas supérieure au minimum d'un facteur 10 à celle de l'ioniseur seul, cette dernière a été négligée. Il est alors possible d'assimiler la réponse en temps globale à la réponse de la cavité seule. Cette dernière dépend du temps de vol des atomes, du temps de résidence et du nombre de contacts. Le nombre de contacts et le temps de vol ont été déterminés à l'aide d'un code de simulation de trajectoires, à partir de la masse des atomes et à partir de la température de la cavité. Une fois le temps de vol soustrait du temps de réponse total, le temps restant correspondait au temps de résidence multiplié par le nombre de contacts.

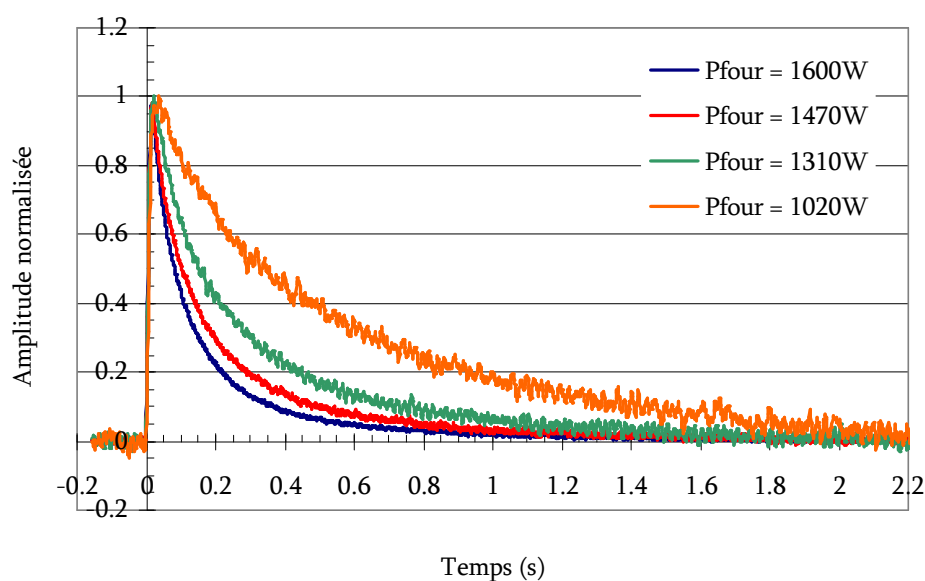


Figure 48 : Réponses en temps obtenues suite à l'injection d'ions Rb^+ dans la cavité du four de SISTHE, pour différentes puissances imposées au four. Ces mesures ont été réalisées avec le tube ioniseur en graphite à 2100 K. Les amplitudes des impulsions ont été normalisées à 1.

Le temps de résidence par contact est donné Figure 49.

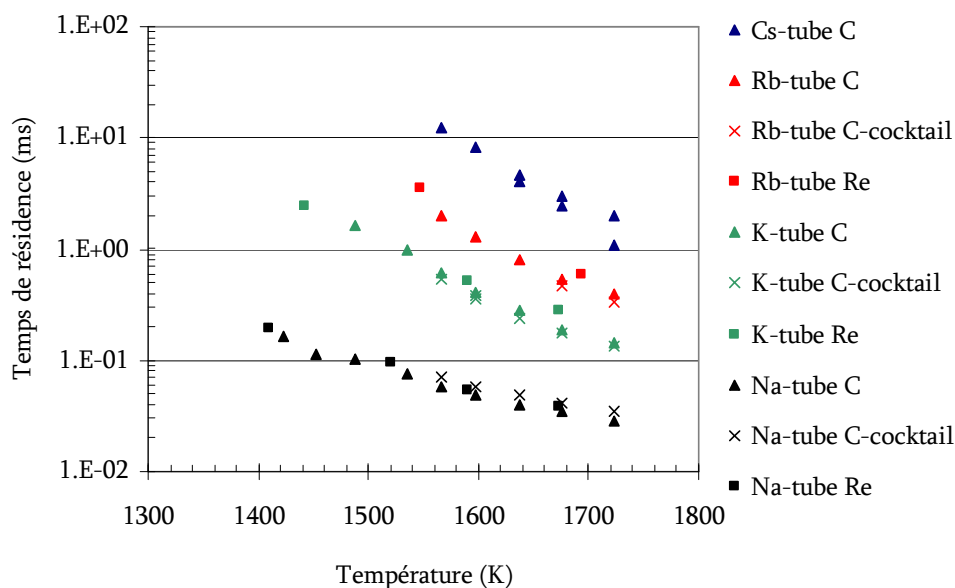


Figure 49 : Evolution du temps de résidence de différents atomes d'alcalins sur une surface en graphite en fonction de sa température. Les tubes ioniseurs en carbone et en rhénium ont été utilisés. Des mesures ont été pratiquées à l'aide de faisceaux d'ions d'un seul type et de faisceaux de « cocktails » d'ions.

Corrélation entre efficacité et temps de réponse

Le rapprochement de la Figure 25 (Efficacité du tube ioniseur en fonction du champ électrique et de la température) et de la Figure 47 (Evolution du temps de réponse du tube ioniseur en fonction du champ électrique et de la température) montre clairement l'existence de la corrélation entre efficacité et temps de transformation atomes-ions. Cette corrélation est aussi apparue de façon évidente lors de la mesure de la réponse en temps globale (cavité+tube) à différentes intensités d'ions césium injectées dans la cavité. Figure 26, l'efficacité du tube diminue lorsque l'intensité injectée augmente. On observe simultanément une augmentation du temps de la réponse globale (Figure 50, figure de gauche). Dans le cas du lithium, l'efficacité est peu dépendante de l'intensité injectée. La variation du temps de réponse est aussi très faible (Figure 50, figure de droite).

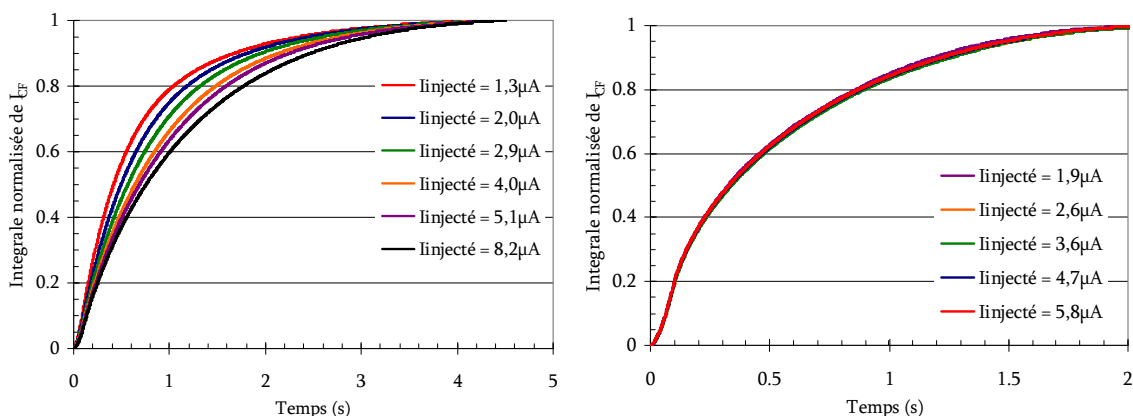


Figure 50 : Evolution de l'intégrale de la réponse en temps globale (cavité+tube) récoltée sur la coupelle de Faraday en fonction du temps. Les différentes courbes ont été mesurées pour différentes intensités de faisceau injecté. Le graphique de gauche a été réalisé pour le césium et celui de droite pour le lithium.

Conclusions des expériences menées avec SISTHE

Au-delà du cadre des besoins engendrés par le développement de l'installation GANIL/SPIRAL 2, il pourrait être intéressant d'adapter ce dispositif pour l'étude d'autres matériaux de cavité et d'ioniseur compte tenu de la faible erreur commise sur les résultats, due en grande partie à la simplicité de leur extraction à partir des mesures. Le dispositif nécessiterait pour cela de subir quelques modifications, voire améliorations pour s'affranchir de difficultés relevées lors de sa première utilisation. Les expériences menées avec ce dispositif ont cependant permis d'extraire de nombreux résultats qui ont été directement exploités lors de la conception de la source à ionisation de surface associée à la cible d'UC de SPIRAL 2 (voir paragraphe 3.15).

4.17 Estimation de l'efficacité d'effusion-ionisation d'alcalins dans l'ECS SIS de SPIRAL 2.

A. Pichard, Thèse de doctorat 2007-2010, paragraphe 4.3

Cette estimation nécessitait d'avoir au préalable déterminé les caractéristiques d'effusion dans le container cible et d'ionisation dans la source des atomes d'alcalins. Leur diffusion en dehors du matériau cible n'est pas présentée dans ce mémoire et n'est pas prise en compte dans la détermination des intensités d'ions, ce qui implique que ces intensités sont des valeurs qu'il faudra corriger à la baisse.

L'efficacité d'effusion des alcalins dans le container de la cible de SPIRAL 2 résulte du temps de vol et du temps de résidence sur les parois. Le temps de vol dans le container cible a été déduit du temps de vol mesuré pour les gaz rares. Pour connaître le temps total de résidence, il a d'abord fallu déterminer le nombre de contacts. A l'aide du code de calcul Monté-Carlo RIBO, l'effusion des atomes de gaz rares a été simulée puis comparée aux mesures effectuées avec l'ECR ECS (4.13). Le nombre de contacts multiplié par le temps par contact déterminé à l'aide du dispositif SISTHE a permis d'évaluer le temps de résidence total. Ajouté au temps de vol, il a permis d'estimer le temps d'effusion dans le container de la cible. Le calcul a été fait pour les atomes de sodium, potassium, rubidium et césium. Pour chaque alcalins, l'efficacité d'effusion a été calculée pour différentes températures de la cible (agissant via le temps de résidence) et pour différents isotopes. La Figure 51 montre le cas des isotopes de Rb.

La cible d'UC est composée de 19 piles juxtaposées de 80 pastilles de 15 mm de diamètre et de 1 mm d'épaisseur chacune. La distance entre surfaces de pastilles peut avoir une influence importante sur le calcul du nombre de contacts et de la distance de vol. Le calcul a donc été fait deux fois, en considérant une distance nulle ou exagérément importante (300 μm). Sur la Figure 51, les traits continus correspondent à une distance nulle, et les traits pointillés à une distance de 300 μm . L'écart d'efficacité maximum entre ces cas est de 20%.

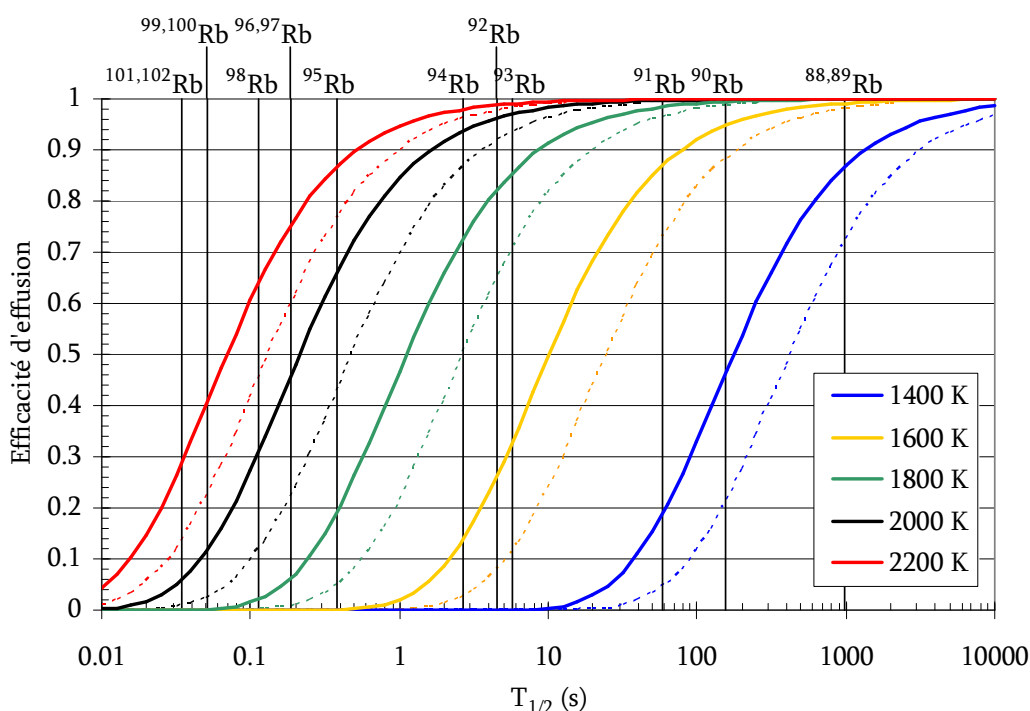


Figure 51 : Evolution de l'efficacité d'effusion dans le container de la cible de SPIRAL 2 en fonction de la durée de vie des isotopes de Rb et de la température de la cible. Les lignes continues et pointillées correspondent à deux géométries différentes de cible prises comme extrêmes dans le calcul (voir texte).

L'efficacité de transformation atome-ion du tube de transfert et du tube d'ionisation de SPIRAL 2 a été calculée à l'aide d'un code Monté Carlo spécifique dans lequel ont été entrées la géométrie de la source décrite au paragraphe 3.15, les valeurs de probabilités d'ionisation par contact théoriques à 2500 K, et les valeurs de champ électrique et de temps de résidence déduites de expériences menées avec SISTHE. Dans ces conditions, pour les isotopes du rubidium et du césium dont la durée de vie est supérieure à 30 ms, l'efficacité de transformation atome-ion dans l'ensemble tube de transfert plus tube ioniseur est très proche de 100%. Les pertes dans ces tubes peuvent donc être négligées au regard de celles qui interviendront lors du processus d'effusion.

5 Conclusion

Ce travail avait pour buts d'évaluer la responsabilité des processus de diffusion, effusion et ionisation dans la transformation atome-ion, de mieux comprendre le comportement temporel des dispositifs ISOL, et d'en faire bénéficier les développements de systèmes de production ISOL. Ces buts ont été en partie atteints : les résultats obtenus avec les ECS ECR de SPIRAL 1 et de SPIRAL 2 et leur confrontation ont permis de décrire analytiquement leur comportement temporel et de mettre en évidence sous quelles conditions il est possible de considérer comme séparables les processus de diffusion, effusion et ionisation, et par conséquent de les considérer comme consécutifs.

Les études ont porté sur plusieurs autres dispositifs et ont permis d'obtenir divers résultats dont les principaux sont rappelés ci-après.

ECS pour SPIRAL 1

Dans le cas de l'ECS de SPIRAL 1, l'expression de l'efficacité totale de la transformation atome-ion comme étant le produit des efficacités de ces différents processus est illégitime. Cette confusion est très répandue, bien au-delà des frontières du GANIL et si la conséquence n'est pas toujours importante sur l'efficacité globale, elle peut empêcher d'identifier la réelle origine de l'insuffisance d'une efficacité et donc empêcher d'y remédier. Dans le cas de SPIRAL 1, une fois l'origine de cette confusion comprise, et il a été possible de faire évoluer le dispositif vers une solution dont les performances sont d'ores et déjà encourageantes. Le test de production d'isotopes de Ne de courtes durées de vie devrait être réalisé avant fin 2013.

Plusieurs études ont été menées dans le but d'étendre la palette de faisceau d'ions de SPIRAL 1 au-delà des ions gazeux. Le principe de la source d'ions alcalins MonoNaKE, a été validé. Les études menées autour de l'ionisation de surface ont montré que pour augmenter significativement l'efficacité d'ionisation, une alternative avantageuse à l'augmentation de la température pouvait être l'application d'un champ électrique dans le tube ioniseur. Cette solution assure une longévité plus importante au matériau utilisé, critère important dans le cas de durées de fonctionnement attendues de plusieurs mois. De plus, la mise en application de cette technique pourrait être envisagée dans la cavité cible voire dans le matériau cible lui-même, ce qui permettrait de s'affranchir partiellement du cheminement aléatoire et chronophage des atomes dans la cavité cible. Le principe⁴² d'une source FEBIAD associée à une cible de graphite, non présenté dans ce mémoire, devrait aussi être testé en ligne en décembre 2013, visant la production de faisceaux de ²³Mg, ²⁵Al, ^{29,30}P, ³¹S, ³³Cl et ³⁹Ca.

Méthode 1→N+ directe

Le développement de la source d'ions alcalins NanoNaKE a été suspendu mais les résultats obtenus permettent de penser que le principe est viable et qu'il serait possible de

produire des ions alcalins multi-chargés avec un même ECS, sans recours à la technique d'amplificateur de charge avec séparateur de masse. Un second résultat important, intéressant aussi les amplificateurs de charge avec séparateur, est que l'interaction entre le courant d'ions mono-chargés injectés et le courant d'ions émis vers l'arrière par la source amplificatrice conduit à un compromis qui limite l'efficacité de la transformation $1+ \rightarrow N+$. Compte tenu de la position du faisceau d'ions mono-chargés, placés sur l'axe des sources amplificatrices, les installations existantes (LPSC, ANL, TRIUMF) sont toutes potentiellement exposées à cette difficulté, et démunie de systèmes pour y remédier.

ECS pour SPIRAL 2

La conception de l'ECS ECR destiné à la phase 2 de SPIRAL 2 repose sur les mêmes principes que ceux utilisés pour l'ECS ECR de SPIRAL 1. Les performances obtenues pour l'efficacité d'effusion-ionisation des isotopes de ^{94}Kr , ^{140}Xe et ^{142}Xe , principaux éléments demandés par les futurs utilisateurs de SPIRAL 2 sont respectivement de 19%, 63% et 43%, et devraient être augmentées grâce aux améliorations apportées sur la prochaine version de la source ECR.

L'association des résultats obtenus sur le temps d'effusion des gaz rares dans la cible de SPIRAL 2 aux résultats obtenus sur le temps de résidence des alcalins (Na, K, Rb, Cs) sur le graphite a permis d'estimer le temps d'effusion des atomes alcalins dans la future cible de SPIRAL 2. Le projet n'a pas placé le développement de faisceaux d'ions alcalins en priorité 1 mais plusieurs demandes ont été déposées. Les développements déjà avancés présentés ci-avant aideront en temps voulu à poursuivre la mise au point de l'ECS équipé d'une source à ionisation de surface.

Des résultats précédents, il est possible de déterminer pour chacun des isotopes de gaz rare et d'alcalins une limite supérieure de production, à laquelle se superposera l'efficacité de relâchement des éléments par le matériau cible, dont une évaluation peut être faite sur la base de la référence [43] pour les éléments Kr et Xe.

Alors que l'influence de la température sur le temps d'effusion des gaz rares en dehors de la cible peut être quasiment négligée, elle est très importante dans le cas des alcalins, et croît avec le numéro atomique des alcalins. Il est donc très important que la cible de SPIRAL 2 puisse être portée et maintenue à la température requise de 2000°C pour limiter les pertes liées au temps d'effusion. Cette température est couramment obtenue avec d'autres systèmes ISOL, mais la taille de la cible en UCx de SPIRAL 2 et la durée de fonctionnement spécifiée font du four de la cible un obstacle technique qui n'a pas encore été définitivement franchi.

6 Perspectives

Parmi les systèmes ISOL, en opération ou en projet, les matériaux cibles à base d'uranium sont très répandus. Près de 70% des faisceaux délivrés à ISOLDE sont produits à partir de cibles d'UCx. La cible prioritaire du projet SPIRAL 2 phase 2 est en UCx car elle répond à la production d'isotopes de 66% des demandes. Le projet SPES utilisera aussi une cible en UCx, ainsi qu'ALTO à l'IPN d'Orsay et que les installations d'Amérique du nord ISAC à TRIUMF et HRIBF à ORNL. Le large spectre des produits de fission et le taux de production sont à l'origine de l'intérêt suscité par l'UCx.

Cependant, une fois produits dans la cible, il faut qu'ils en sortent et qu'ils atteignent la source d'ionisation avant de s'être désintégrés. Le processus de relâchement par la cible est souvent long et donc à l'origine de pertes qui peuvent être importantes. Augmenter le nombre de noyaux produits dans la cible implique souvent une augmentation du volume de la cible, et consécutivement du temps de relâchement. Il existe donc nécessairement un optimum de taille de cible au-delà duquel les pertes dues au temps de relâchement seront plus importantes que le gain en taux de production. Pour déterminer *a priori* la taille de cible optimale pour la production d'un radioélément, il est nécessaire de disposer des données de base qui régissent sa diffusion dans le matériau cible, et pour cela d'étudier en amont le processus de diffusion.

La diffusion dans l'UCx a déjà fait l'objet de nombreuses études allant de l'étude microscopique de l'UCx à la mesure d'efficacité globale, en passant par la mesure du temps de relâchement de nombreux éléments. La variété des dispositifs utilisés et des conditions expérimentales rend difficile l'extraction des caractéristiques absolues de diffusion et donc leur comparaison. Ma participation à certaines de ces études et l'expérience que je retire des études présentées dans ce mémoire m'incitent à penser qu'un dispositif qui permettrait une mesure des caractéristiques de relâchement de plusieurs nuances d'UCx au cours d'une même expérience, dans l'esprit de ce qui a été fait au cours de l'expérience TargISOL, permettrait d'apprécier au moins de façon relative quel est le matériau le plus approprié aux besoins du projet. La compilation des préconisations présentées dans ce mémoire permet de dresser une ébauche de ce que pourrait être ce dispositif : un séparateur accueillant un ECS dont les cibles pourraient être échangées rapidement. Cet ECS devrait être installé en ligne et pouvoir être irradié à l'aide d'un faisceau pulsé d'ions. La présence de noyaux radioactifs pourrait être obtenue de différentes façons :

- Par implantation d'isotopes stables du même élément que l'ion radioactif d'intérêt. En sortie de l'ECS, le temps de transformation atomes-ions de l'ensemble du dispositif pourrait alors être mesuré via le courant d'ions stables. L'efficacité des isotopes radioactifs pourrait alors être simplement déduite à partir de la réponse en temps et de la durée de vie des isotopes, et cela avec une bonne précision puisque les mesures porteraient uniquement sur des courants et sur le temps. Cette méthode nécessite cependant de disposer d'un faisceau primaire d'ions d'intérêt.
- Par implantation des isotopes radioactifs dont on désire mesurer la vitesse de relâchement. Cette technique, utilisée dans le cadre de l'expérience TargISOL,

nécessite de disposer, en amont de l'ECS, d'un système de production d'ions radioactifs. La détermination des caractéristiques de diffusion est moins directe, ce qui engendre un risque d'erreur sur le résultat plus important que la précédente méthode.

- Par production dans la cible des isotopes d'intérêt. Le recours à cette méthode est fréquent car c'est le principe même de beaucoup d'installations de type ISOL. Mais c'est aussi la méthode qui conduit à une erreur sur la détermination de l'efficacité la plus grande car elle repose sur la connaissance de sections efficaces de production absolues. Elles donnent de plus lieu à une production de radio-activité importante qui limite la souplesse d'utilisation du dispositif.

La ligne d'irradiation IRSUD du GANIL semble posséder les caractéristiques nécessaires à la mise en œuvre de la première technique : une grande variété d'ions est disponible à une énergie suffisante pour être implantés en profondeur tout en restant en dessous de la barrière coulombienne, affranchissant ainsi le dispositif d'un ensemble de contraintes de sûreté. Si ce travail était entrepris, il ne pourrait être mené qu'au sein d'une collaboration étroite entre GANIL, le CIMAP, les utilisateurs d'UCx, les producteurs et les laboratoires capables de caractériser le matériau, avant et après irradiation. Cette démarche pourrait se joindre à celle déjà entreprise dans le cadre de la collaboration Européenne ACTILAB qui rassemble les laboratoires du CERN, de l'IPNO, de l'INFN, de PSI et du GANIL et qui a pour but l'étude et le développement des cibles ISOL en UCx.

Le projet Upgrade SPIRAL 1 actuellement en cours de réalisation devrait permettre à terme la production d'une palette élargie d'ions radioactifs via l'utilisation d'une plus grande variété d'ECS. Le terme variété ne recouvre pas simplement le matériau cible et le système d'ionisation. Pour réussir à produire des éléments de courtes durées de vie et dont la chimie freine leur transformation en ions, les ECS devront de plus en plus être spécialisés, conçus avec comme objectif d'être efficaces pour la production d'isotopes particuliers, et non plus dédié à une famille chimique. La spécialisation de ces ECS impliquera de plus nombreux tests, hors ligne et en ligne. Le renforcement des exigences de sûreté a progressivement conduit les développeurs d'ECS à effectuer le maximum de tests hors ligne pour que les risques de dysfonctionnement en ligne soient minimisés. Cette démarche donne maintenant satisfaction mais le test hors ligne a ses limites. Le risque associé au test en ligne existe toujours. Pour éviter d'avoir à construire un banc de tests en ligne, une part du temps de faisceau primaire doit systématiquement être dédiée à la caractérisation en ligne des ECS. Si le temps de faisceau primaire accordé aux développeurs est trop limité, l'évolution des ECS et l'intensité des faisceaux d'ions radioactifs le seront aussi.

- ¹ M. Thoennessen, Nuclear Physics A (2010) 688
- ² National Nuclear Data Center, Brookhaven National Laboratory, based on ENSDF and the Nuclear Wallet Cards, <<http://www.nndc.bnl.gov/chart/>>
- ³ O. Kofoed-Hansen and K.O. Nielsen, Matematisk-Fysiiske Meddelelser, bind **26** nr.7 (1951)
- ⁴ Proceedings of the International Conference on Electromagnetic Isotope Separators and techniques related to their applications, Nuclear Instruments and Methods, section B. Dernier recueil en cours d'édition (Conf. Septembre 2012)
- ⁵ I. Tanihata, Hyperfine Int. **21** (1985) 251
- ⁶ I. Tanihata et al., Physics Letters B **160** (1985) 380
- ⁷ I. Tanihata, Nuc. Instrum. and Meth. Res. B **266** (2008) 4067
- ⁸ P. Karvonen et al., Nuc. Instrum. And Meth. B **266** (2008) 4454
- ⁹ A. Takamine et al., Rev. Scient. Instrum. **76** (2007) 103
- ¹⁰ T. Stora et al., to be published in Proceedings of the XVth International EMIS 2012 Conference, Nucl. Instrum and Methods, section B.
- ¹¹ G. Gaubert et al, Rev. Scient. Instrum. **79** (2008) 02A309
- ¹² B. Cui et al., to be published in Proceedings of the XVth International EMIS 2012 Conference, Nucl. Instrum and Methods, section B.
- ¹³ J. Montaña et al., to be published in Proceedings of the XVth International EMIS 2012 Conference, Nucl. Instrum and Methods, section B.
- ¹⁴ M. Borge et al., Motivations to receive a 2 GeV proton beam at ISOLDE / HIE-ISOLDE: Impact on radioisotope beam availability and physics program, <http://cds.cern.ch/record/1482729?ln=fr>
- ¹⁵ W. Mittig, to be published in Proceedings of the XVth International EMIS 2012 Conference, Nucl. Instrum and Methods, section B
- ¹⁶ T. Enqvist et al., Nuclear Physics A **658** (1999) 47
- ¹⁷ Y. Blummenfeld et al., Phys. Scr **T152** (2013) 014023
- ¹⁸ http://www.nupec.org/lrp2010/Documents/lrp2010_final_hires.pdf
- ¹⁹ P. Jardin et al., Rev. Scient. Instrum. **83** (2012) 02A911
- ²⁰ T. Lamy, R. Geller, P. Sortais, and T. Thuillier, Rev. Sci. Instrum. **77**, 03B101 (2006)
- ²¹ M. Lewitowicz, The Scientific Objectives of the SPIRAL 2 Project, (2007) EDMS SPIRAL2 I-009544
- ²² M. Lewitowicz, Summary of RIB requested for Day 1 SPIRAL 2 Phase 2 experiments, EDMS I-020760
- ²³ H. Tawara and T. Kato, Atomic and Nuclear Data Tables, Vol **36** n°2 (1987) 168
- ²⁴ C. Tamburella, Thèse de Doctorat Université de Paris VII, Juin 1996
- ²⁵ A. C. C. Villari et al., Nucl. Phys. A **701**, (2002) 476c
- ²⁶ J. Consolino et al., in: First Int. Conf. on Ion Sources, Proc. INSTN, Saclay (1969), p. 537.
- ²⁷ N. Lecesne, Thèse de doctorat Université de CAEN, (1997)
- ²⁸ RTD-EU programme N° HPRI-1999-50004, Charge-Breeding Project
- ²⁹ F. Wenander, W. Farabolini, G. Gaubert, P. Jardin, J. Lettry, Nuclear Physics A **746** (2004) 659c-662c
- ³⁰ Voir le site à l'adresse "<http://www.targisol.csic.es/>"
- ³¹ A. Joubert et al., The SISSI Project, IEEE Particle, Accelerator Conference Proceedings, San Francisco, May 1991, vol.1, p. 594.
- ³² Saha Megh Nad (1920). "LIII.Ionization in the solar chromosphere". *Philosophical Magazine Series* **6** **40** (238): 472
- ³³ Thèse de L. Maunoury, Thèse de doctorat Université de CAEN, (1998)
- ³⁴ S. Gibouin, Thèse de doctorat Université de CAEN, (2003)
- ³⁵ M. Santana Leitner, *A Monte Carlo Code to Optimize the Production of Radioactive Ion Beams by the ISOL Technique*, PhD. Thesis, UPC-ETSEIB / CERN-THESIS-2005-039
- ³⁶ R.C. Pardo, R. Harkewic, and P.J. Billquist, Rev. Scient. Instrum. **67** (1996) 1602

-
- ³⁷ V. Mironov, S. Runkel, K.E. Stiebing, O. Hohn, G. Shirkov, H. Schmidt-Böcking and A. Schempp, Rev. Scient. Instrum. **72** (2001) 2271
- ³⁸ R. Campargue, Journal of Physical Chemistry **88** (1984) 4466
- ³⁹ R.C. Vondrasek, R.H. Scott, R.C. Pardo and D. Edgell, Rev. Scient. Instrum. **73** (2002) 548-551
- ⁴⁰ A. Fick, Ann. Phys. Lpz. **170** (1855) 59
- ⁴¹ F. Pellemoine, Thèse de doctorat Université de CAEN, (2001)
- ⁴² O. Bajeat et al., to be published in Proceedings of the XVth International EMIS 2012 Conference, Nucl. Instrum and Methods, section B
- ⁴³ B. Roussière et al., Nuc. Instrum. Meth. B **246** (2006) 288